

Marius GRIGONIS

MIROIRS MULTICOUCHES C/SI À INCIDENCE
NORMALE POUR LA RÉGION SPECTRALE
25-40 NANOMÈTRES

Thèse présentée

à la Faculté des études supérieures de l'Université Laval

pour l'obtention

du grade de Philosophiæ Doctor (Ph.D.)

Département de physique

FACULTÉ DES SCIENCES ET DE GÉNIE

UNIVERSITÉ LAVAL

QUÉBEC

Avril 1997

©Marius Grigonis, 1997



National Library
of Canada

Bibliothèque nationale
du Canada

Acquisitions and
Bibliographic Services

Acquisitions et
services bibliographiques

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file *Votre référence*

Our file *Notre référence*

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-25239-6

Canada

Veni, vidi, vici..

AVANT-PROPOS

On ne peut produire une thèse de doctorat sans la collaboration de nombreuses personnes. Les conseils et les encouragements qu'elles peuvent prodiguer sont souvent indispensables. Il me fait plaisir de leur exprimer ma gratitude.

J'aimerais d'abord manifester ma plus profonde reconnaissance à mon directeur de thèse, le professeur E.J. Knystautas, qui m'a accepté dans son groupe de recherche. Ses conseils ponctuels, nos discussions enrichissantes et son optimisme m'ont efficacement aidé dans la poursuite de mes travaux, outre le soutien financier qu'il m'a alloué tout au long de mon séjour au Canada.

Je resterai toujours très obligé au professeur L. Pranevicius de Vytautas Magnus University (Kaunas, Lituanie) pour son assistance et sa confiance qu'il m'a accordées lors de mon départ à l'Université Laval.

Je désire également exprimer ma profonde gratitude au docteur Vinh Phuc Pham, à Florent Goldberg et à André Granger pour d'avoir à chaque occasion été prêts à m'aider et à me comprendre. Lors des moments les plus incertains ils m'ont toujours encouragé et soutenu. Il va sans dire que les qualités dont j'ai pu faire preuve dans cet ouvrage leur sont largement dues. Je remercie de plus Florent Goldberg pour m'avoir tout appris dans le laboratoire et pour l'avoir fait avec un grand enthousiasme et le plaisir d'aider.

Mes remerciements s'adressent également à Arvydas Kanapickas de Vytautas Magnus

University (Kaunas, Lituanie) pour les discussions que nous avons eues ensemble. Ses idées, ses pensées et ses réflexions resteront toujours pour moi l'exemple exceptionnel.

J'aimerais particulièrement remercier ma famille, mes parents et ma soeur. Leur patience, leur souci et leur volonté de m'aider à tous les moments, tout en étant si éloigné de moi, ont été un soutien indispensable. Cette thèse n'aurait jamais vu le jour sans eux.

Mes remerciements très spéciales s'adressent à Julie. Ses encouragements, sa confiance, son aide, ses compromis pour moi ainsi que sa présence générale ont réveillé en moi l'envie de chercher et l'espoir de trouver.

Finalement, je tiens à exprimer mes remerciements à plusieurs personnes qui m'ont aidé à réaliser diverses expériences. J'aimerais d'abord remercier J. McCaffrey du CNRC pour l'analyse des multicouches par microscopie électronique à transmission. Mes remerciements s'adressent également au docteur A. Adnot du CERPIC pour les expériences AES et ESCA ainsi que pour les conseils enrichissants lors de l'interprétation des données. J'aimerais aussi remercier les techniciens de l'Université Laval qui m'ont aidé à réaliser les mesures de la diffraction des rayons X.

MIROIRS MULTICOUCHES C/SI À INCIDENCE NORMALE
POUR LA RÉGION SPECTRALE 25-40 NANOMÈTRES

RÉSUMÉ COURT

Nous avons proposé la nouvelle combinaison de matériaux, C/Si, pour la fabrication de miroirs multicouches à incidence normale dans la région spectrale 25-40 nm. Les résultats expérimentaux montrent que cette combinaison possède une réflectivité d'environ $\sim 25\%$ dans la région spectrale 25-33 nm et une réflectivité d'environ $\sim 23\%$ dans la région spectrale 33-40 nm. Ces valeurs de réflectivité sont les plus grandes obtenues jusqu'à maintenant dans la région spectrale 25-40 nm.

Les miroirs multicouches ont été par la suite caractérisés par microscopie électronique à transmission, par diverses techniques de diffraction des rayons X et par spectroscopie d'électrons AES et ESCA. La résistance des miroirs aux températures élevées a été également étudiée. Les résultats fournis par les méthodes de caractérisation indiquent que cette combinaison possède des caractéristiques très prometteuses pour son application comme miroir pour les rayons X mous.

M. Grigonis .

Prof. E.J. Knystautas .

MIROIRS MULTICOUCHES C/SI À INCIDENCE NORMALE
POUR LA RÉGION SPECTRALE 25-40 NANOMÈTRES

RÉSUMÉ

Nous avons proposé diverses nouvelles combinaisons de matériaux pour la fabrication de miroirs multicouches à incidence normale, dans la région spectrale 25-40 nm. Les multicouches sont basées sur le silicium (Si) et l'aluminium (Al), comme matériaux non absorbants.

Nous avons expérimentalement étudié la nouvelle combinaison C/Si. La réflectivité de miroirs fabriqués par la méthode de pulvérisation, a été mesurée grâce au monochromateur à incidence rasante McPherson 2.2 m. La lumière émise par des particules excitées d'hélium ou de néon et dispersée par ce monochromateur a été utilisée comme source du rayonnement des rayons X mous. La réflectivité des miroirs a été mesurée pour sept longueurs d'ondes: 25.6 nm, 28.3 nm, 30.4 nm, 32.7 nm, 36.1 nm, 38.7 nm et 40.6 nm. Les résultats ont indiqué que cette combinaison possède une réflectivité d'environ ~25% dans la région spectrale 25-33 nm et une réflectivité d'environ ~23% dans la région spectrale 33-40 nm.

Les miroirs ont été par la suite étudiés par diverses techniques de caractérisation. Cela inclut la microscopie électronique à transmission, la diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD), la diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD) et les

spectroscopies d'électrons AES et ESCA.

La microscopie électronique à transmission et la diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD) ont révélé que les matériaux forment les couches planes ayant les interfaces abruptes. Une faible interdiffusion et une faible rugosité d'interfaces ont été toutefois observées.

La technique de la diffraction des rayons X aux grands angles et la microscopie électronique à transmission ont été appliquées pour l'étude de la résistance des miroirs aux températures élevées. Cette étude a démontré que les structures multicouches ont une grande résistance à des températures aussi élevées que 600°C. La formation de carbure de silicium aux interfaces n'a pas été observée. L'interdiffusion des matériaux devient toutefois de plus en plus remarquable, lors du traitement en fonction de la température.

L'analyse par les spectroscopies d'électrons AES et ESCA a été appliquée pour l'étude de la composition atomique de multicouches. L'étude a montré que les multicouches ne contiennent que du carbone, du silicium et de l'oxygène. La contamination par l'oxygène est présente seulement dans les premières couches atomiques de la surface. L'étude a indiqué la présence de carbure de silicium en phase amorphe aux interfaces.

M. Grigonis _

Prof. E.J. Knystautas

Table des matières

Avant-propos	i
Résumé court	iv
Résumé	v
Table des matières	vi
Liste des tableaux	xi
Liste des figures	xiv
Chapitre 1 : Introduction	1
Bibliographie	4

Chapitre 2 : Recherche théorique sur la réflectivité de matériaux élémentaires et de miroirs multicouches dans la région spectrale 25-40 nm	0
2.1 Réflexion de la lumière sur l'interface entre deux milieux	0
2.1.1 Généralités	0
2.1.2 Cas d'une couche simple	1
2.2 Constantes optiques des matériaux dans le domaine des rayons X mous . . .	11
2.3 Matériaux réfléchissants à incidence normale dans la région spectrale 25-40 nm	13
2.4 Miroirs multicouches	17
2.5 Calculs de la réflexion sur des structures multicouches	18
2.6 Choix de matériaux	24
2.7 Matériaux non-absorbants	29
2.8 Matériaux absorbants	33
2.8.1 Région spectrale 25-30 nm	33
2.8.2 Région spectrale 30-40 nm	43
Bibliographie	48

Chapitre 3 : Fabrication des miroirs multicouches C/Si et mesures de leur réflectivité à incidence normale	52
3.1 Fabrication des miroirs	52
3.1.1 Méthodes de fabrication des couches minces	52
3.1.2 Description du système à vide	56
3.1.3 Dispositif pour la fabrication des miroirs	58
3.1.4 Étalonnage des épaisseurs	59
3.2 Mesures de la réflectivité à incidence normale	62
3.2.1 Description de l'appareil pour les mesures de réflectivité	62
3.2.2 Description du système à vide du monochromateur	64
3.2.3 Source du rayonnement	66
3.2.4 Système de comptage pour les mesures de réflectivité	70
3.2.5 Design des miroirs	71
3.2.6 Résultats expérimentaux de mesures de réflectivité	73
3.2.7 Étude de la saturation de réflectivité	75

3.2.8	Comparaison de la réflectivité des miroirs C/Si et des miroirs constitués d'une couche unique de platine (Pt)	78
3.3	Mesures de la réflectivité des miroirs C/Si à incidence rasante (LAXRD)	80
	Bibliographie	83
	Chapitre 4 : Caractérisation des miroirs multicouches C/Si par microscopie électronique à transmission (TEM)	85
4.1	Considérations générales	85
4.2	Méthodes de préparation des échantillons	90
4.3	Résultats et conclusions	93
	Bibliographie	105
	Chapitre 5 : Étude de la résistance des miroirs C/Si à des températures élevées par diffraction des rayons X (XRD) et microscopie électronique à transmission (TEM)	106
5.1	Considérations générales	106
5.2	Étude par diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD)	109
5.3	Étude par microscopie électronique à transmission (TEM)	115

Bibliographie	124
Chapitre 6 : Caractérisation des miroirs multicouches C/Si par la spectroscopie des électrons Auger (AES) et par l'analyse chimique par spectroscopie d'électrons (ESCA)	126
6.1 Généralités	126
6.2 Profilométrie des multicouches par AES	128
6.3 Mesures de la composition en surface par ESCA	130
6.4 Profilométrie de l'interface par ESCA	134
6.5 Profilométrie de l'interface par AES	137
6.6 Profilométrie de l'interface par ESCA <i>in situ</i>	143
Bibliographie	146
Chapitre 7 : Conclusions	148
Appendice 1: Logiciel OMREFL1	153
Bibliographie	153

Liste des tableaux

2.1	Valeurs de l'énergie de Gibbs ΔG^0 (kJ/mol) pour certains composés du silicium (Si) et de l'aluminium (Al).	31
2.2	Enthalpie de formation ΔH^0 kJ/mol pour divers siliciures de Mo, Nb, La, Y, Au, C, B ₄ C.	31
2.3	Valeurs de l'énergie de Gibbs ΔG^0 (kJ/mol) pour divers composés de matériaux absorbants.	31
2.4	Données thermodynamiques ΔG^0 et ΔH^0 (kJ/mol) pour divers composés de Ru, Os, Mn, Ir et Pt.	41
3.1	Identification des lignes importantes. *Lignes utilisées.	69
3.2	Design des miroirs multicouches C/Si en utilisant les constantes optiques calculées à partir des facteurs de diffusion donnés par Henke.	72

3.3	Design des miroirs multicouches C/Si en utilisant les constantes optiques données par Windt.	70
3.4	Résultats expérimentaux des mesures de réflectivité.	74

Liste des figures

2.1	Réflexion de la lumière sur l'interface entre deux milieux.	7
2.2	Réflexion de la lumière sur une couche simple.	9
2.3	Réflexivité théorique à incidence normale des matériaux les plus réfléchissants dans la région spectrale 25-40 nm.	14
2.4	Réflexivité du platine (Pt) à incidence quasi-normale (5 deg) dans la région spectrale 25-40 nm.	16
2.5	Deux types de miroirs multicouches: (1) cristal idéal de Bragg et (2) empilement de lames quart d'onde (<i>quarter wave stack</i>).	18
2.6	Modèle multicouche.	20
2.7	Réflexivité théorique à incidence quasi-normale (5 deg) d'un miroir multicouche. Les épaisseurs des couches sont d_1 et d_2 ($n_1 = n_2 = 1$, $k_1 = 0$, $k_2 = 0.2$, $d_1 + d_2 = \lambda/2$).	22

2.8	Tableau périodique des éléments. Marqués en noir sont les éléments qui n'ont pas été inclus dans notre étude.	2
2.9	Constantes optiques des matériaux non-absorbants calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique donnés par Henke: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k	3
2.10	Constantes optiques des matériaux non-absorbants données par Windt: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k	3
2.11	Constantes optiques des matériaux non-absorbants calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique donnés par Henke: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k	3
2.12	Réflectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur le silicium (Si) comme matériau non-absorbant.	3
2.13	Réflectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur l'aluminium (Al) comme matériau non-absorbant.	3
2.14	Influence de la densité sur la réflectivité des miroirs B_4C/Si	4
2.15	Constantes optiques des matériaux absorbants calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique donnés par Henke: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k	4

2.16	Réfectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur le silicium (Si) comme matériau non-absorbant.	45
2.17	Réfectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur l'aluminium (Al) comme matériau non-absorbant.	46
3.1	Schéma du système à vide utilisé pour la fabrication des couches minces: (1) enceinte, (2) pompe turbomoléculaire, (3) valve manuelle, (4) tube flexible, (5) pompe mécanique, (6) serpentín pour l'azote liquide, (7) vannes d'admission d'air et d'argon et (8) appareils de mesures de vide.	56
3.2	Schéma du dispositif pour la fabrication des miroirs: (1) et (2) cibles, (3) canon d'argon, (4) substrat de silicium (Si), (5) senseur d'épaisseur piézo-électrique et (6) masque mobile.	58
3.3	Calibrage des épaisseurs: (1) le substrat est couvert par une plaque mince de silicium, (2) le dépôt de couche et (3) la plaque de silicium est enlevée.	60
3.4	Exemple des mesures d'épaisseur d'une couche á l'aide du profilomètre DEKTAK II. Épaisseur de la couche est de 93.8 nm.	61
3.5	Schéma de l'appareil pour les mesures de réfectivité: (1) source de la lumière des rayons X mous, (2) chambre principale avec réseau de diffraction, (3) chambre pour les mesures de réfectivité, (4) miroir et (5) détecteur.	62

- 3.6 Spectres typiques des mesures de réflectivité: (a) le monochromateur est fixé sur la ligne désirée et (b) le monochromateur balaye la ligne d'intérêt. 65
- 3.7 Schéma principal de l'appareil pour les mesures de réflectivité: (1) chambre principale, (2) et (3) chambres respectivement pour la source et pour les mesures de réflectivité, (4) vannes manuelles d'admission d'air ou de gaz, (5) et (6) vannes manuelles d'isolement, (7) pompe à diffusion avec le piège réfrigéré, (8) tube flexible, (9) appareils de mesures de vide et (10) pompe mécanique. 65
- 3.8 Schéma principal de la source du rayonnement: (1) cathode, (2) anode, (3) filament de tungstène (W), (4) vanne d'admission d'air, (5) vanne d'admission de gaz, (6) appareil de mesure de vide, (7) chambre de la source et (8) et (9) appareils de mesures des courants. 67
- 3.9 Spectres du rayonnement produit par la source et dispersé par le monochromateur: (a) spectre d'hélium et (b) spectre du néon. 68
- 3.10 Système de comptage: (1) ChanneltronTM, (2) préamplificateur, (3) inverseur, (4) compteur et (5) ordinateur. 71
- 3.11 Influence du nombre de couches sur la réflectivité de miroirs multicouches C/Si. 76
- 3.12 Comparaison de la saturation de réflectivité pour deux longueurs d'ondes. . 77

3.13	Comparaison de réflectivité des miroirs C/Si et des miroirs constitués d'une couche unique de platine (Pt).	79
3.14	Réflectivité du miroir 0017 (C/Si, 50 périodes) à incidence rasante.	81
4.1	Miroir multicouche Mo/Si ($\sim 4/6$ nm, 13 périodes), grandissement de $3.7 \cdot 10^5$. 87	87
4.2	Miroir multicouche Mo/Si ($\sim 4/6$ nm, 13 périodes), grandissement de $1.9 \cdot 10^6$. 88	88
4.3	Miroir multicouche Mo/Si ($d_{Si}=6$ nm = const, $d_{Mo}=4, 6, 8, 10, 12, 4, 16$ nm), grandissement de $1.9 \cdot 10^6$	89
4.4	Méthode de Bravman et Sinclair: (1) les substrats sont collés ensemble, (2) (3) une petite partie du bloc est séparée et amincie, (4) la procédure de <i>dimpling</i> et (5) perforation finale.	91
4.5	Substrat de Si(001), positionnement de divers plans.	92
4.6	Méthode de <i>clivage aux petits angles</i> : (1),(2),(3) clivage d'échantillons selon les plans (120) et (110) et (4) observation au microscope.	94
4.7	Miroir multicouche C/Si ($\sim 5/10$ nm, 25 périodes (0001)), grandissement de 88 600.	96
4.8	Miroir multicouche C/Si ($\sim 5/10$ nm, 25 périodes (0001)), grandissement de 650 000.	97

4.9	Miroir multicouche C/Si ($\sim 4.7/9$ nm, 25 périodes (0007)), grandissement de 73 100.	9
4.10	Miroir multicouche C/Si ($\sim 4.7/9$ nm, 25 périodes (0007)), grandissement de 665 000.	9
4.11	Miroir multicouche C/Si ($\sim 4.7/9$ nm, 25 périodes (0007)), grandissement de 665 000.	10
4.12	Multicouche C/Si ($\sim 7/15$ nm, 5 périodes (0011)), grandissement de 665 000.	10
4.13	Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 440 000.	10
4.14	Miroir multicouche de C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000.	10
4.15	SAED (diffraction d'électrons) typique des miroirs multicouche C/Si indiquant que toutes les couches sont amorphes.	104
5.1	Spectres de diffraction des rayons X (HAXRD) des miroirs C/Si après le traitement de température: (a) $T=23^{\circ}\text{C}$ (sans traitement) et (b) $T=200^{\circ}\text{C}$	110
5.1	(Suite) Spectres de diffraction des rayons X (HAXRD) des miroirs C/Si après le traitement de température: (c) $T=400^{\circ}\text{C}$ et (d) $T=600^{\circ}\text{C}$	111

5.2	Comparaison des spectres HAXRD enregistrés pour les deux faces du miroir 0020: (a) face de multicouche et (b) face de substrat.	11
5.3	Comparaison des spectres XRD enregistrés pour les deux faces du miroir 0020 (petits angles): (a) face de la multicouche et (b) face du substrat. . .	11
5.4	Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 440 000, sans traitement de température. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.	11
5.5	Miroir multicouche de C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000, sans traitement de température. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.	11
5.6	Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 490 000. $T=200^{\circ}\text{C}$. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.	11

-
- 5.7 Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000. T=200°C. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes. 120
- 5.8 Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 490 000. T=400°C. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes. 121
- 5.9 Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000. T=400°C. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes. 122
- 5.10 Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000. T=600°C. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes. 123
- 6.1 Profilométrie AES de deux multicouches C/Si: (a) Multicouche 0015 (C/Si 5nm/11nm) et (b) Multicouche 0013 (C/Si 10nm/22nm). 129
- 6.2 Spectre ESCA de la surface de la multicouche C/Si (5nm/11nm). 131

-
- 6.3 Pics ESCA de C 1s (a) et Si 2p (b) enregistrés à haute résolution pour la multicouche 0015 (C/Si 5nm/11nm). Les concentrations calculées à partir des surfaces de pics sont très approximatives. 135
- 6.4 Profilométrie de l'interface C-Si par ESCA; pics de C 1s (a) et Si 2p (b) enregistrés à haute résolution pour la multicouche 0013 (C/Si 10nm/22nm). 135
- 6.4 (Suite) Profilométrie de l'interface par AES. Pics de C 1s (a) et Si 2p (b) de la multicouche C/Si (10nm/22nm) enregistrés en mode de haute résolution. 136
- 6.5 Pics AES de référence pour le carbone (graphite) et pour le carbure de silicium. 138
- 6.6 Spectres AES ($dN(E)/dE$) du carbone à haute résolution sur la ligne passant approximativement par le centre du cratère; des spectres ont été pris à tous les millimètres ($d=0$ à $d=8$). La multicouche analysée est C/Si(5nm/11nm). Le temps de décapage est de 16 min. 140
- 6.7 Profilométrie AES à haute résolution de l'interface de la multicouche C/Si (5nm/11nm). 141
- 6.8 Spectres AES ($dN(E)/dE$) du carbone à haute résolution lors de la profilométrie de l'interface (multicouche C/Si(5nm/11nm)). Les spectres correspondent aux points de la figure précédente. 142

-
- 6.9 Étude de l'interface C/Si par ESCA *in situ*: (a) pic C1s après le dépôt du silicium pendant 1h, (b) pic C1s après le dépôt du carbone pendant 15 min, (c) pic C1s après le dépôt supplémentaire du carbone pendant 15 min, (d) pic C1s après le dépôt supplémentaire du carbone pendant 30 min, (e) pic C1s après le dépôt supplémentaire du carbone pendant 30 min, (f) pic C1s après le décapage de la structure pendant 5 min. 144

Chapitre 1

Introduction

Au cours des dernières années, un intérêt considérable s'est développé pour la fabrication de miroirs multicouches à incidence normale pour les rayons X mous. Ces miroirs utilisant les principes d'interférence, pourraient servir pour diverses applications: micro lithographie [1], astronomie [2,3], laser à rayons X [4], diagnostique de plasma [5], etc. Les multicouches sont fabriquées en déposant alternativement deux matériaux avec des constantes optiques aussi différentes que possible. Étant donné que tous les matériaux dans cette région spectrale sont plus ou moins absorbants, il est important de choisir des combinaisons de matériaux faiblement absorbants dont la différence entre les constantes optiques est suffisamment grande. De plus, ces matériaux doivent permettre de former des interfaces abruptes et planes.

Plusieurs combinaisons de matériaux ont été proposées [6], diverses techniques de fabrication ont été appliquées [7-10], mais les travaux ont essentiellement été réalisés dans la

région spectrale en dessous de 25 nm. La plus grande réflectivité obtenue jusqu'à maintenant est de $\sim 68.7\%$ (Mo/Be, $\lambda = 11.3$ nm) [11]. La combinaison la plus couramment utilisée est Mo/Si ($R \sim 66\%$ pour $\lambda = 13.4$ nm) [12,13].

La région spectrale au-delà de 25 nm reste encore peu étudiée. L'incertitude inconnue sur les constantes optiques a été la raison principale de cette négligence. Deuxièmement dans cette région spectrale, la réflectivité à incidence normale de certains matériaux élémentaires (Os, Pt) devient déjà plus élevée que pour des longueurs d'ondes plus courtes. Cependant elle n'est toutefois pas aussi grande qu'avec des miroirs multicouches. C'est la recherche sur la réflectivité de matériaux élémentaires et de miroirs multicouches dans la région spectrale au-delà de 25 nm (25-40 nm), qui est le but de cette thèse. Les études suivantes ont été accomplies:

1. Nous avons étudié théoriquement la région spectrale 25-40 nm et avons proposé diverses combinaisons de matériaux, qui pourraient être utiles pour la fabrication de miroirs à incidence normale. Les résultats sont présentés au Chapitre 2.

2. Pour l'étude expérimentale nous avons choisi la combinaison C/Si¹ [14-17]. Nous avons fabriqué les miroirs et avons mesuré leur réflectivité à incidence normale. Les réflectivités de miroirs dans cette région spectrale ont été comparées avec celles d'une couche mince de platine (Pt). L'étude initiale à l'aide de la diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD) a été également réalisée. Ces études sont décrites au Chapitre

¹Nous rapportons cette combinaison pour la première fois.

3.

3. Les miroirs ont par la suite été caractérisés par la microscopie électronique à transmission (TEM). Cette étude nous a permis d'observer et de caractériser en intersection les structures fabriquées. Les résultats obtenus sont présentés au Chapitre 4.

4. Au Chapitre 5, nous avons décrit les résultats obtenus en analysant la résistance des miroirs multicouches C/Si aux températures élevées. Cette étude a été accomplie en utilisant deux techniques de caractérisation: la diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD) et la microscopie électronique à transmission (TEM) en intersection.

5. Nous avons également appliqué les techniques de AES et ESCA pour l'étude des interfaces de couches ainsi que pour l'étude de la composition de surface. La périodicité de structure a également été étudiée par la profilométrie de AES. Les résultats obtenus sont présentés au Chapitre 6.

6. La conclusion générale est présentée au Chapitre 7.

Bibliographie

- [1] *Optical Society of America Technical Digest of the 1993 Topical Meeting on Soft X-Ray Projection Lithography, Monterey, CA, May 10-12, (1993).*
- [2] A.B. Walker, T.W. Barbee, R.B. Hoover et J.F. Lindblom, *Science* **241**, 1781 (1988)
- [3] L. Golub, M. Herant, K. Kalata, I. Lovas, G. Nystropm, E. Spiller et J. Wilczynski
Nature **344**, 842 (1990).
- [4] S. Suckewer, C.H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane et D. Voorhees, *Phys. Rev. Lett.*
55, 1753 (1985).
- [5] R.H. Day et T.W. Barbee, *Rev. Sci. Instrum.* **56**, 791 (1985).
- [6] C. Montcalm, P.A. Kearney, J.M. Slaughter, B.T. Sullivan, M. Chaker, H. Pépin et
C.M. Falco, *Appl. Opt.* **35** , 5134 (1996).
- [7] E. Spiller, *AIP Conf. Proc.* **75**, 124 (1981).
- [8] J.M. Slaughter, P.A. Kearney, D.W. Schulce et C.M. Falco, *Proc. SPIE* **1343**, 73
(1990).

-
- [9] T.W. Barbee, *AIP Conf. Proc.* **75**, 131 (1981).
- [10] S.V. Gaponov, E.S. Gluskin, S.A. Guser, B.M. Luskin et N.N. Salachenko, *Opt. Commun.* **38**, 7 (1981).
- [11] K.M. Skulina, C.S. Alford, R.M. Bionta, D.M. Makowiecki, E.M. Gullikson, R. Souffi, J.B. Kortright et J.H. Underwood, *Appl. Opt.* **34**, 3727 (1995).
- [12] D.G. Stearns, R.S. Rosen et S.P. Vernon, *Appl. Opt.* **32**, 6952 (1993).
- [13] G. Gutman, *J. X-Ray. Sci. Technol.* **4**, 142 (1994).
- [14] M. Grigonis et E.J. Knystautas, *Appl. Opt.* (sous presse).
- [15] ACFAS, Université McGill, Montréal, présentation par l'affiche: "Fabrication de miroirs à incidence normale pour la région spectrale 20-35 nm", M. Grigonis et E.J. Knystautas.
- [16] Surfaces et Interfaces des Matériaux Avancés (SIMA), Université de Montréal, Montréal, présentation par l'affiche: "Caractérisation des miroirs multicouches pour les rayons X mous par AES, ESCA, LAXRD et TEM", M. Grigonis et E.J. Knystautas.
- [17] Journées de CERPIC, Université Laval, Québec, présentation par l'affiche: "Miroirs multicouches C/Si à incidence normale pour la région spectrale 20-35 nm", M. Grigonis et E.J. Knystautas.

Chapitre 2

Recherche théorique sur la réflectivité de matériaux élémentaires et de miroirs multicouches dans la région spectrale 25-40 nm

2.1 Réflexion de la lumière sur l'interface entre deux milieux

2.1.1 Généralités

Considérons une onde plane se réfléchissant sur une interface plane séparant deux milieux homogènes et isotropes (figure 2.1). Étant donné que les propriétés optiques de ces milieux sont décrites par leurs constantes complexes $\tilde{n}_1 = n_1 + jk_1$ et $\tilde{n}_2 = n_2 + jk_2$, les coefficients de réflexion et de transmission vont s'exprimer en fonction de ces constantes et de l'angle d'incidence Φ_1 .

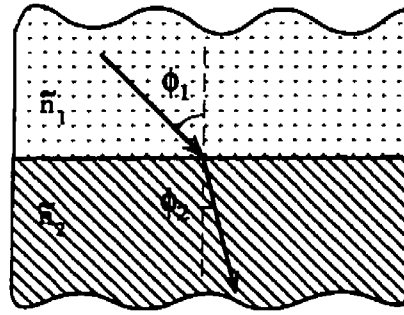


Figure 2.1: Réflexion de la lumière sur l'interface entre deux milieux.

Ces coefficients, étant également des valeurs complexes, sont calculés en utilisant les formules de Fresnel. Pour les deux directions de la polarisation de la lumière incidente S et P les coefficients s'écrivent ¹ [1] :

$$r_{12} = \frac{\tilde{n}_1 \cos \Phi_1 - \tilde{n}_2 \cos \Phi_2}{\tilde{n}_1 \cos \Phi_1 + \tilde{n}_2 \cos \Phi_2}, \text{ polarisation } S, \quad (2.1)$$

$$r_{12} = \frac{\tilde{n}_1 \cos \Phi_2 - \tilde{n}_2 \cos \Phi_1}{\tilde{n}_1 \cos \Phi_1 + \tilde{n}_2 \cos \Phi_2}, \text{ polarisation } P. \quad (2.2)$$

Dans toutes les formules \tilde{n}_1 et \tilde{n}_2 sont les constantes optiques complexes, Φ_1 l'angle d'incidence et Φ_2 l'angle de réfraction qui est relié à Φ_1 par la relation de Snell-Descartes:

$$\tilde{n}_1 \sin \Phi_1 = \tilde{n}_2 \sin \Phi_2. \quad (2.3)$$

¹Dans ce qui suit nous ne considérons que le cas de la polarisation S .

Si la lumière se réfléchit sur une interface *air/substrat* à incidence normale, l'expression du coefficient de réflexion (2.1) devient:

$$r_{12} = \frac{1 - \widetilde{n}_2}{1 + \widetilde{n}_2}. \quad (2.4)$$

Jusqu'à maintenant, on a considéré que toutes les surfaces sont planes, parallèles, homogènes et isotropes, ce qui de toute évidence est un cas idéal. En réalité, une surface de séparation a toujours une certaine rugosité ainsi qu'un certain nombre de défauts. Cela rend la valeur de la réflexion sur une surface rugueuse moins grande que celle d'une réflexion sur une surface idéale. Afin d'inclure cet effet dans les calculs, on utilise le facteur de Debye-Waller, définie par la relation suivante [2] :

$$DW = \exp \left[-2 \left(\frac{2\pi\sigma \cos \Phi_1}{\lambda} \right)^2 \right], \quad (2.5)$$

σ étant la valeur de la rugosité quadratique moyenne (RMS) de la surface, Φ_1 l'angle d'incidence et λ la longueur d'onde de la lumière. On multiplie ce facteur avec les résultats de réflexion calculés à l'aide des formules de Fresnel, ce qui conduit aux valeurs de la réflexion qui auraient pu être obtenues en pratique.

2.1.2 Cas d'une couche simple

Jusqu'ici, on a considéré le cas d'une réflexion sur l'interface entre deux milieux dont les épaisseurs sont infinies. Considérons maintenant le cas d'une couche simple, d'une épaisseur finie, ayant l'indice de réfraction complexe \tilde{n}_1 . Cette couche est déposée sur un substrat d'indice \tilde{n}_2 et immergée dans un environnement d'indice de réfraction n_0 (figure 2.2).

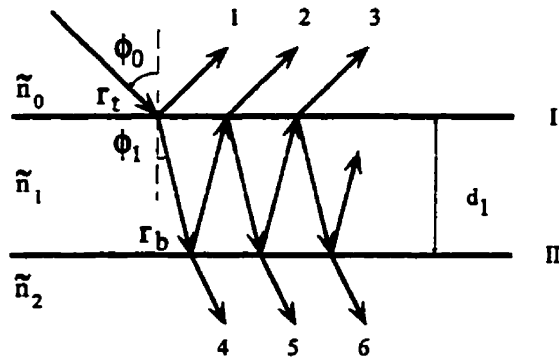


Figure 2.2: Réflexion de la lumière sur une couche simple.

Pour l'instant, on considère que toutes les interfaces sont idéales, c'est-à-dire qu'on néglige la présence de la rugosité. Le coefficient global de réflexion est déterminé en calculant les coefficients de réflexion relatifs aux interfaces I et II, soit r_{01} et r_{12} par les relations (2.1) et en tenant compte de toutes les réflexions multiples. Par exemple, pour les rayons 1, 2, ...n on obtient:

$$r_{global} = r_{01} + t_{01} t_{10} r_{12} \exp 2i\varphi + t_{01} t_{10} r_{10} r_{12}^2 \exp 4i\varphi + \dots + t_{01} t_{10} r_{12} \exp 2i\varphi (r_{12} r_{10} \exp 2i\varphi)^{n-2}, \quad (2.6)$$

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_1 d_1 \cos \Phi_1, \quad (2.7)$$

t_{01}, t_{02} ($t_{0X} t_{X0} + r_{X0}^2 = 1$) étant les coefficients de transmission, φ le déphasage entre deux rayons consécutifs.

Le coefficient de réflexion global r_{global} est une suite géométrique de raison $r_{01} r_{12} e^{2i\varphi}$ et s'écrit donc:

$$r_{global} = \frac{r_{01} + r_{12} \exp 2i\varphi}{1 + r_{01} r_{12} \exp 2i\varphi}. \quad (2.8)$$

Comme nous l'avons dit plus haut, afin d'inclure l'effet de rugosité dans les calculs, il faut utiliser le facteur de Debye-Waller. Avant d'utiliser la formule (2.8), tous les coefficients de Fresnel dans (2.8) doivent être multipliés par ce facteur. Cette procédure correspond à la situation d'interface idéale, c'est-à-dire sans rugosité, avec cependant une couche de transition complémentaire d'épaisseur σ . La couche de transition diminue la réflexion mais augmente la transmission ($t_{01} t_{10} + r_{10}^2 = 1$).

2.2 Constantes optiques des matériaux dans le domaine des rayons X mous

L'interaction entre le rayonnement électromagnétique de courte longueur d'onde λ (30 – 2000 eV) (0.6 – 41 nm) et la matière peut être décrite à l'aide des facteurs de diffusion atomique $f_1 + if_2$. La théorie montre que ces facteurs, obtenus des données de sections efficaces de photo-absorption, sont reliés aux constantes optiques du matériau par la relation suivante [3]:

$$\tilde{n} = n + i\beta = (1 - \delta) + i\beta = 1 - r_e \lambda^2 N_{at} (f_1 + if_2)/2\pi, \quad (2.9)$$

r_e étant le rayon classique de l'électron, λ la longueur d'onde, $f_1 + if_2$ le facteur de diffusion atomique, et N_{at} le nombre d'atomes dans 1 cm^3 du matériau.

Il suffit donc de connaître les facteurs de diffusion atomique et on sera capable de calculer les indices de réfraction et d'absorption. La base de données de ces facteurs a été compilée pour la première fois par Henke *et al.* en 1982 [4]. Cette version initiale, établie pour la région spectrale (100 – 2000 eV) (0.6 – 12 nm)², a été ensuite étendue et corrigée plusieurs fois. Les données disponibles actuellement ($E = 30 - 1000$ eV (41 – 1.2 nm), $Z = 1 - 94$) [5,6] sont considérées comme indispensables et sont citées dans la plupart des travaux accomplis dans cette région spectrale. Plusieurs travaux ont montré

²Elle incluait les éléments de Z=1-94.

que les constantes optiques dérivées de ces facteurs décrivent les propriétés optiques des matériaux de manière très exacte. Dans notre cas, puisque la région spectrale où nous avons travaillé (25 – 40 nm) se trouve aux limites de cette base de données, l'incertitude des indices optiques pourrait déjà être prévue. Premièrement, cette incertitude peut venir du fait que les facteurs de diffusion ne tiennent pas compte de l'interaction entre les atomes de la matière. Cette approximation est normalement valable pour des énergies de rayonnement au delà de 50 eV (inférieur à 25 nm). Pour les valeurs d'énergie plus petites la photo-absorption ainsi que les facteurs de diffusion atomique peuvent être sensibles à l'environnement où se trouvent les atomes. Il a toutefois été démontré que même si ces interactions doivent être considérées, les constantes optiques dérivées de ces facteurs constituent encore une bonne approximation, même pour les énergies aussi basses que 25 eV (les longueurs d'ondes aussi longues que 50 nm) [6]. Nos expériences initiales ont indiqué des résultats analogues. Cependant, dans notre étude nous avons utilisé également l'autre base de données connue sous le nom des constantes de Windt [7-9]. Les constantes optiques de cette compilation ont été déterminées par les mesures de réflexion sur les couches minces de divers matériaux et ont ensuite été calculées en tenant compte de la rugosité de la surface. Cette base de données est aussi souvent utilisée pour l'interprétation des résultats expérimentaux et pour leur comparaison avec les mêmes résultats obtenus en utilisant les facteurs de diffusion atomique. Quoique quelques travaux ont déjà montré que les facteurs de diffusion sont plus exacts pour la prédiction que ceux de Windt, il faut cependant remarquer que la région spectrale où nous avons travaillé est très peu connue

et nous sommes parmi les premiers à nous y intéresser. Chaque prédiction basée sur la connaissance d'un seul type de constantes optiques est donc risquée et demeure incertaine. Quoique les expériences initiales aient montré que les constantes dérivées des facteurs de diffusion atomique seraient plus utiles que ceux de Windt, on présentera dans quelques cas les résultats interprétés avec les deux types de constantes optiques. De plus, les constantes de Windt montrent, en règle générale, des absorptions plus grandes que celles de Henke. La réflectivité, calculée à l'aide de ces constantes, sera donc moins grande que celle calculée à l'aide des facteurs donnés par Henke. En utilisant ces deux types de constantes, nous pouvons avoir une idée de l'incertitude des constantes utilisées en comparant les valeurs expérimentales de réflectivité avec les valeurs théoriques calculées.

2.3 Matériaux réfléchissants à incidence normale dans la région spectrale 25-40 nm

Peu de matériaux peuvent réfléchir efficacement la lumière à incidence normale dans le domaine spectral des rayons X mous. La réflexion est donc faible dans toute la région considérée ici, surtout pour les longueurs d'ondes courtes. Par exemple, pour la longueur d'onde de 30 nm, les matériaux les plus réfléchissants donnent une réflectivité inférieure à 4%. Pour des longueurs d'onde plus longues, la réflectivité devient plus élevée. Toutefois cette valeur ne dépasse pas 15% (pour 40 nm) dans l'osmium (Os) qui est considéré comme un des matériaux les plus réfléchissants dans cette région spectrale.

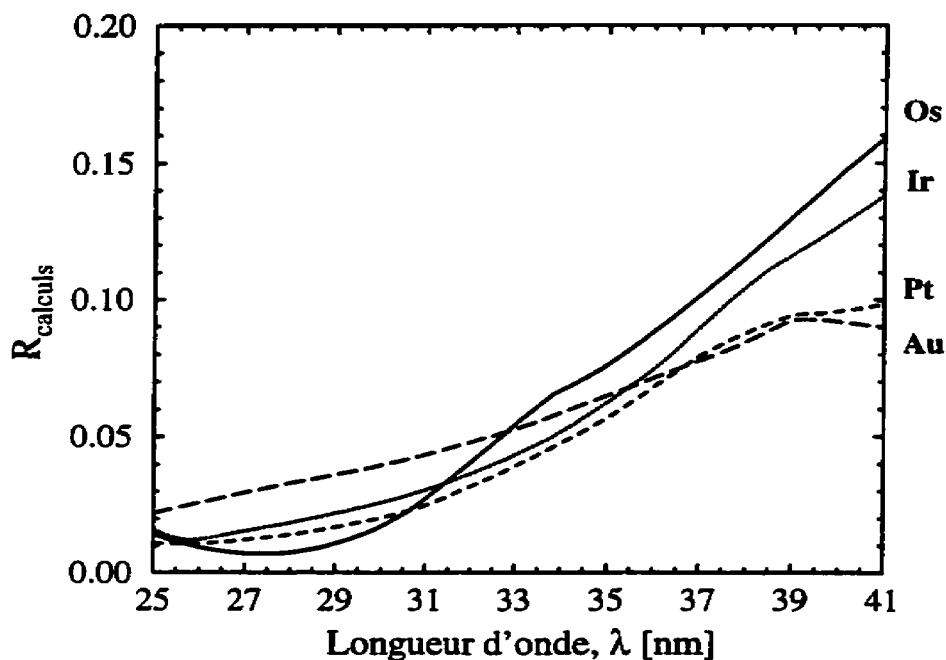


Figure 2.3: Réflectivité théorique à incidence normale des matériaux les plus réfléchissants dans la région spectrale 25-40 nm.

À la figure 2.3, nous présentons les courbes de réflectivité théorique pour quatre matériaux que nous considérons comme les plus réfléchissants. Les calculs ont été faits pour une incidence normale en utilisant les constantes optiques dérivées des facteurs de diffusion atomique donnés par Henke. À cause de la rugosité et de l'incertitude des constantes optiques ces valeurs de la réflectivité seront moins grandes en pratique. Ceci est illustré à la figure 2.4, où nous présentons les résultats expérimentaux des mesures de réflectivité pour le platine (Pt) à incidence quasi-normale (5 deg)³. Nous présentons

³Pour les détails de fabrication voir Chapitre 3.

également les courbes de réflectivité théorique calculées en utilisant trois valeurs différentes de la rugosité (0.5 nm, 1 nm, 1.5 nm). Une incertitude notable des mesures ($\pm 1\%$) ainsi que l'incertitude inconnue sur les indices optiques ne permettent pas d'évaluer précisément la rugosité de la surface. Cependant, on peut remarquer que la correspondance entre les résultats théoriques et expérimentaux est la plus grande lorsque la valeur de la rugosité est située entre 0.5 nm et 1.0 nm. Les résultats sont en accord avec des valeurs typiques de la rugosité des couches minces de divers matériaux, déposées sur des substrats de silicium (Si) à l'aide de la méthode de pulvérisation [9]. Il faut remarquer que la rugosité d'un substrat de silicium (Si) est de 0.3 – 0.5 nm [10,11]. Une couche d'un matériau déposée sur ce substrat, augmente normalement la rugosité totale. Il est donc normale que la surface ait une rugosité plus grande que 0.5 nm. D'autre part, la valeur de la rugosité que nous avons trouvé ne semble être plus grande que 1.0 nm. En tenant compte du fait que la rugosité du silicium (Si) est autour de ~ 0.5 nm, on voit que la couche de platine (Pt) n'augmente pas la rugosité du substrat de plus de 0.5 nm. À titre de comparaison, on peut noter que des couches minces de platine (Pt) ayant une épaisseur d'environ 10 nm, fabriquées dans les conditions optimales à l'aide de la méthode d'évaporation par faisceau électronique, augmentent la rugosité du substrat de silicium (Si) de 0.28 - 0.6 nm [12]. Il est à noter que les surfaces des couches fabriquées par pulvérisation ont généralement une rugosité plus petite que celles fabriquées à l'aide de la méthode d'évaporation par faisceau électronique [12].

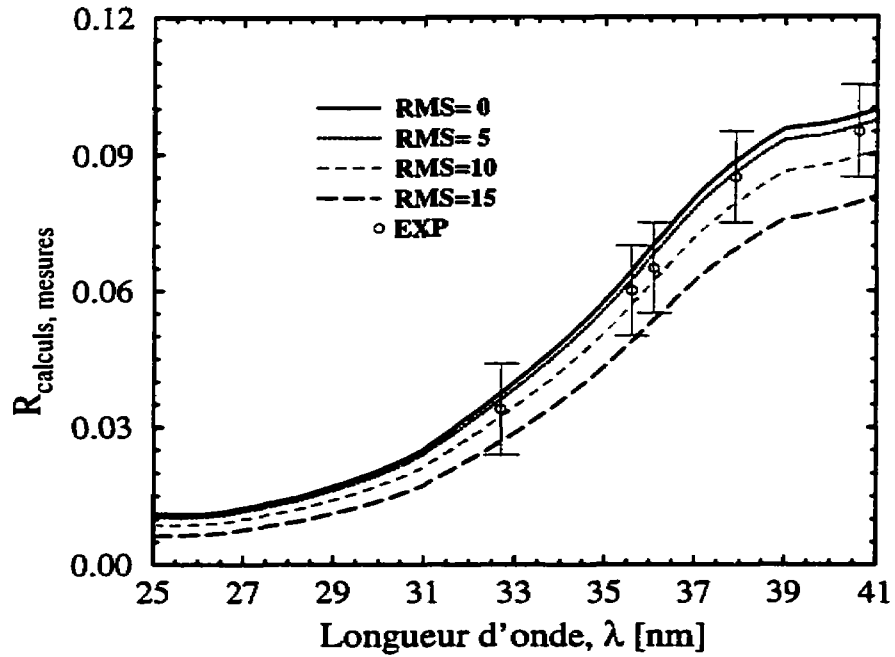


Figure 2.4: Réflectivité du platine (Pt) à incidence quasi-normale (5 deg) dans la région spectrale 25-40 nm.

La faible réflectivité des matériaux dans le domaine X-UV est un grand désavantage en ce qui concerne diverses applications des rayons X mous. Les valeurs réelles de la réflectivité obtenues en utilisant ces matériaux ne peuvent être appliquées en pratique sans entraîner des difficultés majeures. Cette faible réflectivité rend très mauvaise la performance des systèmes optiques. Cela exige une recherche de nouveaux principes et de nouvelles méthodes pour augmenter la réflectivité dans cette région spectrale.

2.4 Miroirs multicouches

Les miroirs diélectriques aux couches multiples sont déjà couramment utilisés depuis quelques décennies. Cependant, ces miroirs sont employés seulement dans la région spectrale de la lumière visible. Presque tous les matériaux utilisés dans la fabrication de miroirs multicouches, deviennent très absorbants dans la région spectrale au-dessous de 100 nm. De plus, leurs indices de réfraction approchent de l'unité dans la région spectrale inférieure à 15 nm. Normalement, cela pourrait expliquer pourquoi des multicouches comme les miroirs ne peuvent être utilisées dans le domaine des rayons X mous. Dans une proposition intéressante, Spiller [13,14] a démontré que même si ces matériaux sont absorbants, une grande valeur de la réflectivité peut être obtenue. Il faut utiliser des multicouches de deux matériaux alternés, ayant une grande différence entre leurs indices d'absorption et de réfraction $\Delta n, \Delta k$ ($\Delta n = n_1 - n_2$, $\Delta k = k_1 - k_2$). L'idée de base est de placer le matériau absorbant en couches extrêmement minces (l'épaisseur des couches dépend de l'absorption du matériau) dans les noeuds de l'onde stationnaire incidente. De plus, l'absorption du deuxième matériau doit être aussi faible que possible. Si on peut satisfaire ces deux conditions, on pourra fabriquer des miroirs ayant de très grandes valeurs de réflectivité (théoriquement $R \Rightarrow 1$ si l'absorption du deuxième matériau est égale à 0). C'est un modèle connu sous le nom de *crystal idéal de Bragg* (figure 2.5 (1)). Le désavantage principal de ce type de miroir est qu'un très grand nombre de couches ayant des épaisseurs du matériau absorbant très minces est nécessaire. Ceci n'est pas

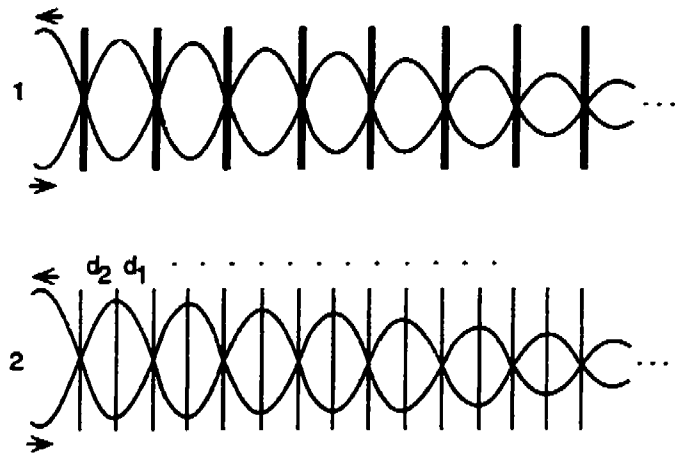


Figure 2.5: Deux types de miroirs multicouches: (1) cristal idéal de Bragg et (2) empilement de lames quart d'onde (*quarter wave stack*).

souhaitable puisque, en pratique, la fabrication d'une couche mince, avec une épaisseur aussi mince que celle dont on parle ici, sera une tâche très compliquée. L'épaisseur minimale d'une couche mince qu'on peut déposer sans diminuer les propriétés optiques de la couche, dépend de plusieurs paramètres tels que la méthode de fabrication, les conditions pendant la fabrication, les matériaux utilisés, etc. (voir, par exemple [12]).

Le deuxième modèle, connu sous le nom de *empilement de lames quart d'onde*, est basé sur l'idée que toutes les couches ont une même épaisseur égale à $\lambda/4$ (Figure 2.5 (2)). Par conséquent, chaque couche est située entre le noeud et l'anti-noeud de l'onde. Ce modèle pourrait donner de très grandes valeurs de réflectivité pour un plus petit nombre de couches. Néanmoins, le désavantage principal de ce modèle, pour les rayons X mous,

est qu'à cause de l'absorption dans les endroits des anti-noeuds de l'onde stationnaire, pe
d'interfaces peuvent contribuer à la réflectivité, diminuant ainsi la valeur de la réflectivité
Les résultats obtenus avec ces deux types de miroirs sont illustrés à la figure 2.7 où nous
présentons un exemple de la réflectivité d'un miroir constitué de couches alternées de deux
matériaux d'absorption $k = 0.2$ et $k = 0$ respectivement. Pour simplifier les calculs, on
considère que n_1 et n_2 sont égaux à 1. Avant de discuter des résultats, on présentera la
procédure que l'on a utilisée pour calculer la réflectivité des structures multicouches.

2.5 Calculs de la réflexion sur des structures multicouches

Pour calculer la valeur de la réflectivité, on peut appliquer diverses méthodes parmi
lesquelles il y en a deux qui sont plus fréquemment utilisées. La première est la méthode
des matrices et la deuxième est en fait une généralisation du cas d'une couche mince
traité auparavant. Étant donné que la seconde méthode est celle qu'on a utilisée dans nos
calculs, nous allons la détailler ci-après. Les descriptions des deux méthodes peuvent être
trouvées dans la plupart des livres en optique [1].

La méthode que nous présentons ici est très simple et est basée sur l'usage répétitif de
la relation 2.8 de la page 10 (figure 2.6). Connaissant les coefficients de Fresnel de toutes
les interfaces r_{12} , r_{21} , r_{23} , r_{02} , on applique la relation suivante à l'interface *première*

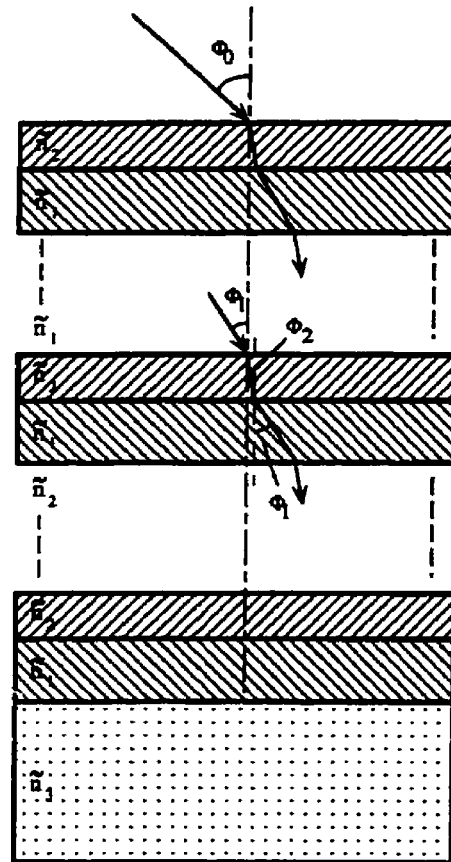


Figure 2.6: Modèle multicouche.

couche/substrat. On a:

$$r_x = \frac{r_{21} + r_{13} \exp 2i\varphi}{1 + r_{21}r_{13}e^{2i\varphi}} \quad (2.10)$$

De cette façon, nous éliminons la première couche et la remplaçons par une surface fictive dont le coefficient de réflexion est r_x . Ensuite, on recommence la même procédure pour l'interface *deuxième couche/surface fictive*, ce qui conduit à la valeur du coefficient

de réflexion suivante

$$r_x = \frac{r_{12} + r_x e^{2i\varphi}}{1 + r_{12} r_x e^{2i\varphi}}. \quad (2.11)$$

Le coefficient de réflexion de l'ensemble croît alors avec le nombre de couches. La procédure est appliquée ainsi de suite jusqu'à ce que toutes les couches soient éliminées. Pour la dernière couche on écrit:

$$r_x = \frac{r_{02} + r_x e^{2i\varphi}}{1 + r_{02} r_x e^{2i\varphi}}. \quad (2.12)$$

Pour conclure, la réflectivité de cette structure multicouche sera donnée par:

$$R = r_x^2. \quad (2.13)$$

Auparavant, les interfaces de couches ont été supposées idéales et sans rugosité. Comme nous l'avons précisé plus haut, afin de tenir compte de la rugosité dans les calculs, les coefficients de Fresnel doivent être multipliés par le facteur de Debye-Waller.

À la figure 2.7, nous présentons les résultats des calculs du coefficient de réflexion pour un miroir multicouche constitué de deux matériaux alternés ayant respectivement les indices d'absorption $k_2 = 0.2$ et $k_1 = 0$. Pour simplifier, on suppose que $n_1 = n_2 = 1$. La période de la structure est $\lambda/2$. Les calculs ont été faits en fonction du nombre de périodes

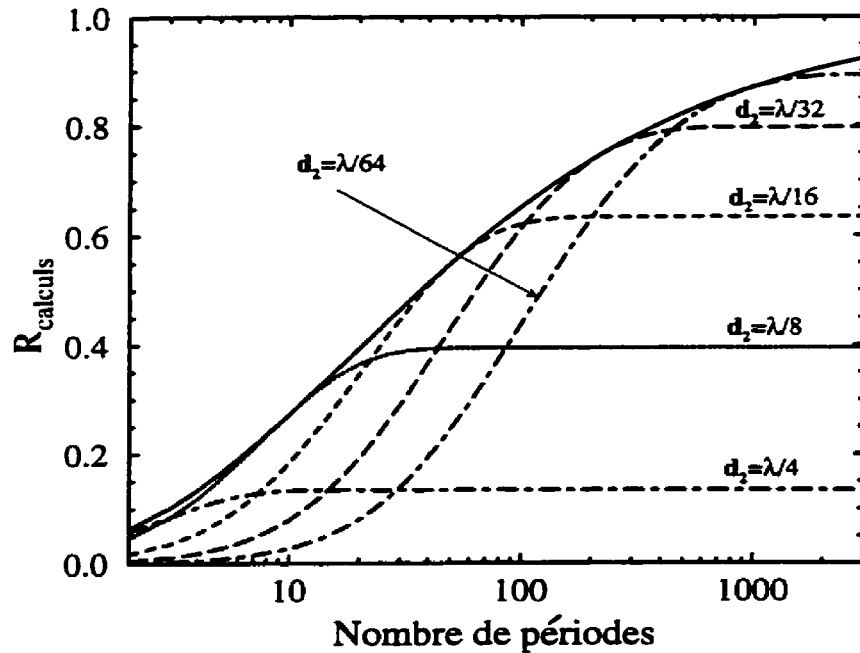


Figure 2.7: Réflectivité théorique à incidence quasi-normale (5 deg) d'un miroir multicouche. Les épaisseurs des couches sont d_1 et d_2 ($n_1 = n_2 = 1$, $k_1 = 0$, $k_2 = 0.2$, $d_1 + d_2 = \lambda/2$).

et des épaisseurs de la couche absorbante comme paramètres. On peut voir que de très grandes valeurs de réflexion peuvent être obtenues si les couches du matériau absorbant sont extrêmement minces. Ceci correspond au cas mentionné ci-dessus et est connu sous le nom de *crystal idéal de Bragg*. Puisque les couches absorbantes sont localisées aux endroits anti-nodaux de l'onde, les pertes d'énergie causées par l'absorption sont minimales, ce qui permet d'avoir d'aussi grandes valeurs du coefficient de réflexion. Cependant, cela exige un très grand nombre de périodes et des épaisseurs très minces de couches absorbantes.

ce qui n'est pas souhaitable. D'autre part, si les épaisseurs des couches sont égales à $\lambda/4$ (le cas de *quarter wave stack*), la réflectivité devient faible à cause de l'absorption et rend le miroir peu utile. Le meilleur choix est un compromis entre les deux cas, quoiqu'il faille remarquer que le modèle du *cristal idéal de Bragg* est à préférer, si on a besoin d'une grande résolution. Si on a besoin d'une bonne réflectivité, on utilisera plutôt le modèle de *empilement de lames de quart d'onde*. Il arrive parfois qu'une combinaison de ces deux modèles soit utilisée. Dans ce cas, les épaisseurs des couches varient en profondeur, la période de la structure étant constante ($\lambda/2$) [15] .

L'autre conclusion que l'on peut tirer en regardant cette figure est que pour chaque valeur du nombre de périodes, il existe une certaine valeur de l'épaisseur de couche absorbante pour laquelle la valeur du coefficient de réflexion est maximale (figure 2.7 (courbe solide)). Cette valeur optimale peut être trouvée par la méthode itérative en variant les valeurs de l'épaisseur de couche absorbante. La situation devient plus compliquée si le deuxième matériau est aussi absorbant. En pratique, il n'existe pas de matériaux qui n'absorbent pas dans la région spectrale qui nous intéresse. On a donc dans notre cas deux paramètres variables. Ce sont l'épaisseur de la couche absorbante et l'épaisseur de la couche non-absorbante (ou la période).

Pour notre étude, nous avons développé un logiciel qui permet de calculer ces valeurs optimisées pour n'importe quelle structure multicouche dans le cas de deux couches absorbantes (voir Appendice 1). Le logiciel calcule la valeur optimale de l'épaisseur de la

couche absorbante pour diverses valeurs de la période. Ensuite, il compare ces valeurs entre elles pour trouver celle qui donne la plus grande réflectivité.

Il est évident que les valeurs du coefficient de réflexion seront toujours moins grande que celles présentées dans la figure 2.7 à cause de l'absorption dans les couches ⁴. On doit trouver alors un matériau ayant une absorption aussi faible que possible. De plus, on a besoin d'un deuxième matériau ayant des constantes optiques très différentes par rapport à celles du matériau non-absorbant. Ainsi, on exige les plus grandes valeurs de Δn et Δk . Ces deux exigences sont fondamentales pour le choix des matériaux.

2.6 Choix de matériaux

La meilleure combinaison sera celle qui contient deux matériaux ayant un grand contraste dans les indices optiques et dont les interfaces de couches sont planes et abruptes. Normalement, pour le choix des matériaux, il faut considérer les critères suivants [16,17]

(1) Pour la couche non-absorbante, il faut trouver un matériau ayant une absorption aussi faible que possible.

(2) Pour la couche absorbante, il faut trouver un matériau ayant les plus grandes différences dans les indices de réfraction et d'absorption par rapport au matériau non-absorbant.

⁴Auparavant on a supposé que $k_1 = k_2 = 0$.

(3) Il faut choisir des matériaux formant des couches planes et continues.

(4) Il faut choisir des matériaux ayant entre eux de faibles valeurs d'interdiffusion et de faibles réactivités chimiques.

(5) Il faut choisir des matériaux ayant une faible réactivité chimique avec les molécules contaminantes d'oxygène, d'azote, etc., qui sont toujours présentes dans les systèmes de fabrication.

(6) Il faut choisir des matériaux qui ne sont ni toxiques, ni radioactifs, etc.

(7) Il est préférable que les matériaux choisis ne soient pas chers.

Comme nous l'avons spécifié auparavant, les critères (1) et (2) sont fondamentaux surtout le premier qui exige une très faible absorption du matériau non-absorbant. En répondant à ces deux critères, une meilleure performance du miroir n'est toutefois pas garantie. Les critères (3) et (4) sont également importants. Il s'agit ici de la qualité des couches, de la qualité de leurs interfaces et de la compatibilité des matériaux. Les meilleurs résultats sont obtenus lorsque les couches sont homogènes, isotropes et si leurs interfaces sont abruptes (interdiffusion faible) et planes. Évidemment ce serait le cas idéal. En pratique, les couches et les interfaces ne seront jamais idéales et leur qualité dépendra de plusieurs paramètres reliés tout d'abord à la méthode de fabrication, aux conditions de fabrication (température de substrat, le taux de dépôt, la pression du gaz de pulvérisation) et aux matériaux utilisés. Plusieurs travaux ont traité de l'influence de

la méthode de fabrication sur la qualité des multicouches (voir par exemple [18–20]). En choisissant une combinaison de deux matériaux, il faut également considérer la probabilité que ces matériaux puissent former des composés et que l'interdiffusion puisse avoir lieu. En conséquence de ces processus, par exemple, les épaisseurs et la rugosité des interfaces augmentent. Ces effets diminueront la performance du miroir. Ils sont donc très importants et ne peuvent être négligés lors du choix de matériaux. Afin de prévoir la probabilité de la formation d'un composé, on utilise les diagrammes binaires et les données thermodynamiques. Bien que ces quantités supposent les conditions d'équilibre qui, en pratique, ne sont pas réalisées pendant la fabrication, ils peuvent néanmoins indiquer les tendances de certaines réactions. Une de ces quantités est l'énergie de Gibbs définie par la relation suivante:

$$\Delta G^0 = \Delta H^0 - T\Delta S^0 \quad (2.14)$$

ΔH^0 , ΔS^0 étant respectivement l'enthalpie et l'entropie de la formation. La signification de l'énergie de Gibbs est que plus la valeur de ΔG sera négative, plus grande sera la probabilité pour qu'un composé se forme à l'interface. Pour les réactions solide-solide, l'entropie de formation étant petite, elle peut être négligée. Cela donne:

$$\Delta G^0 \cong \Delta H^0 \quad (2.15)$$

La définition de l'énergie de Gibbs suggère que pour les miroirs multicouches, faudrait utiliser les combinaisons de matériaux dont les valeurs de l'enthalpie de formation sont aussi positives que possible. Dans ce cas, la probabilité d'une réaction entre les matériaux sera petite. Cependant, les grandes valeurs positives de l'énergie de Gibbs ne garantissent pas que l'interface aura de meilleures caractéristiques. L'autre effet - l'interdiffusion - doit être considéré également. Par exemple, si l'interdiffusion de matériaux a une grande valeur, les interfaces aussi deviendront moins abruptes. Notons que, même si l'énergie de Gibbs n'indique pas si l'interdiffusion aura lieu, ces processus peuvent néanmoins être reliés. On sait qu'une réaction de deux matériaux forme une couche avec une certaine valeur de l'épaisseur et que normalement l'augmentation de cette épaisseur diminue la performance du miroir. Dans certains cas cependant, ces réactions peuvent jouer un rôle positif. Par exemple: à la suite d'une réaction un composé se forme dont les propriétés empêchent la diffusion des matériaux, il s'agit alors d'une barrière pour la diffusion des matériaux. Dans le cas de Mo/Si, l'enthalpie de formation du MoSi₂ est négative et vaut -44 kJ/mol [21]. À premier vue, cet effet devrait donner une influence négative car une formation à l'interface augmentera son épaisseur. Cependant, le composé servira à empêcher l'interdiffusion entre le molybdène (Mo) et le silicium (Si). Notons qu'il est important que l'épaisseur de la couche du composé soit très mince. Si cette réaction forme une couche épaisse, les conséquences seront négatives même si la diffusion est empêchée. De bons résultats seraient obtenus si on pouvait déposer des couches très minces aux interfaces du troisième matériau ayant les propriétés de barrière pour

l'interdiffusion [23]. Ceci empêcherait les matériaux de multicouches de réagir.

Le critère (5) concerne la réactivité des matériaux avec divers contaminants dans les systèmes pendant la fabrication ou lors de l'exposition du miroir à l'environnement atmosphérique. Ces contaminants sont composés d'oxygène (O), d'azote (N) et de carbone (C). Les probabilités, que les matériaux formeront en présence de ces contaminants divers composés, peuvent être prévues à l'aide des analyses thermodynamiques. Si les composés à former sont des oxydes ou des nitrures, la probabilité de leur formation sera donnée par l'énergie de Gibbs. Dans ce cas, on ne peut pas négliger l'entropie de formation car sa valeur pour les réactions gaz-solide est assez élevée.

Le critère (6) rejette les matériaux qui peuvent être dommageable pour la santé.

Le tableau périodique des éléments est présenté, avec les éléments suivants marqués en noir (non inclus dans l'étude) : les métaux alcalins (Li, Na, K, Rb, Cs, Fr), les métaux alcalin-terreux (Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ra), les terres rares (Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu), les métaux de transition (Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, Pt, Au, Os, Ir, Sn, Pb, Bi, Po, At, Rn), les métalloïdes (B, Al, Ga, In, Tl, Ge, Si, Sn, Te, Se, Po), et les non-métaux (C, N, P, As, Sb, Bi, O, S, Se, Te, Po, H, N, P, As, Sb, Bi, O, S, Se, Te, Po).

Figure 2.8: Tableau périodique des éléments. Marqués en noir sont les éléments qui n'ont pas été inclus dans notre étude.

En tenant compte de ces critères, nous avons choisi plusieurs combinaisons de matériaux pour la fabrication de miroirs dans la région spectrale 25-40 nm. Lors de notre étude théorique nous avons inclus presque tous les matériaux du tableau périodique, à l'exception

de ceux qui possèdent des propriétés inappropriées telles qu'une activité chimique extrêmement grande, la radioactivité, la toxicité ainsi que les matériaux non-solides. À la figure 2. nous présentons le tableau périodique des éléments où nous avons marqué en noir les éléments qui n'ont pas été inclus dans notre étude.

2.7 Matériaux non-absorbants

Étant donné que tous les matériaux absorbent dans la région spectrale 25-40 nm, il faut seulement considérer les matériaux ayant une absorption aussi faible que possible. Notre étude montre que seulement le silicium (Si) et l'aluminium (Al) peuvent être réellement utiles pour cette application. Tous les autres éléments doivent être rejetés puisque leurs valeurs d'absorption sont trop grandes. À la Figure 2.9 (a) (b), nous présentons les courbes des constantes optiques (n, k) pour ces deux matériaux ainsi que celles de quelques autres éléments calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique donnés par Henke [5,6].

On présente également les constantes optiques de Windt [7,9] (Figure 2.10 (a) (b)). Bien que ces constantes montrent une absorption plus grande des matériaux, les deux types de données indiquent que l'absorption de l'aluminium (Al) est plus faible que celle du silicium (Si), suggérant l'aluminium (Al) comme le meilleur choix. Il faut remarquer, toutefois, que l'aluminium (Al) est un matériau ayant une très grande activité chimique (critères (5)).

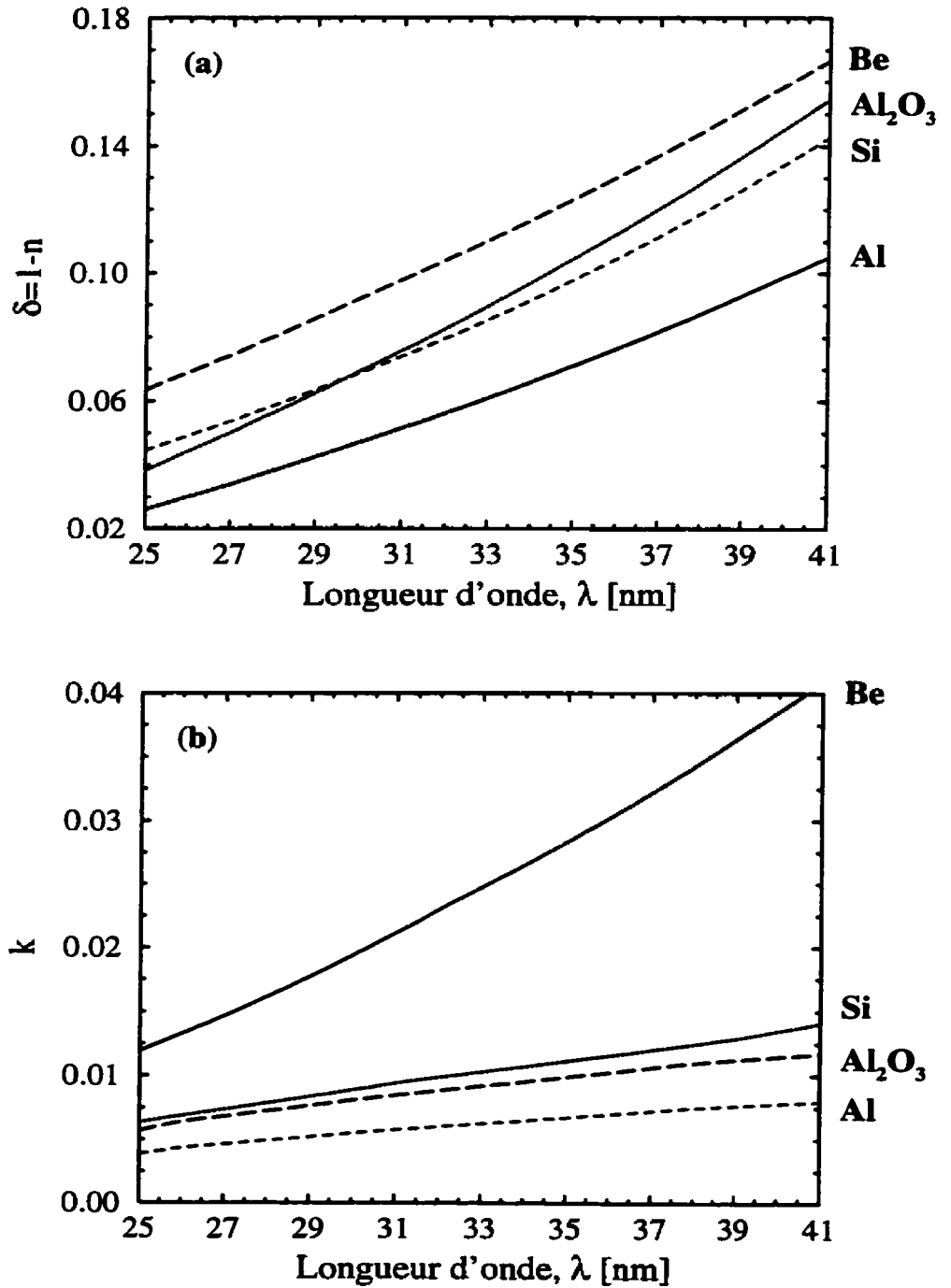


Figure 2.9: Constantes optiques des matériaux non-absorbants calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique donnés par Henke: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k .

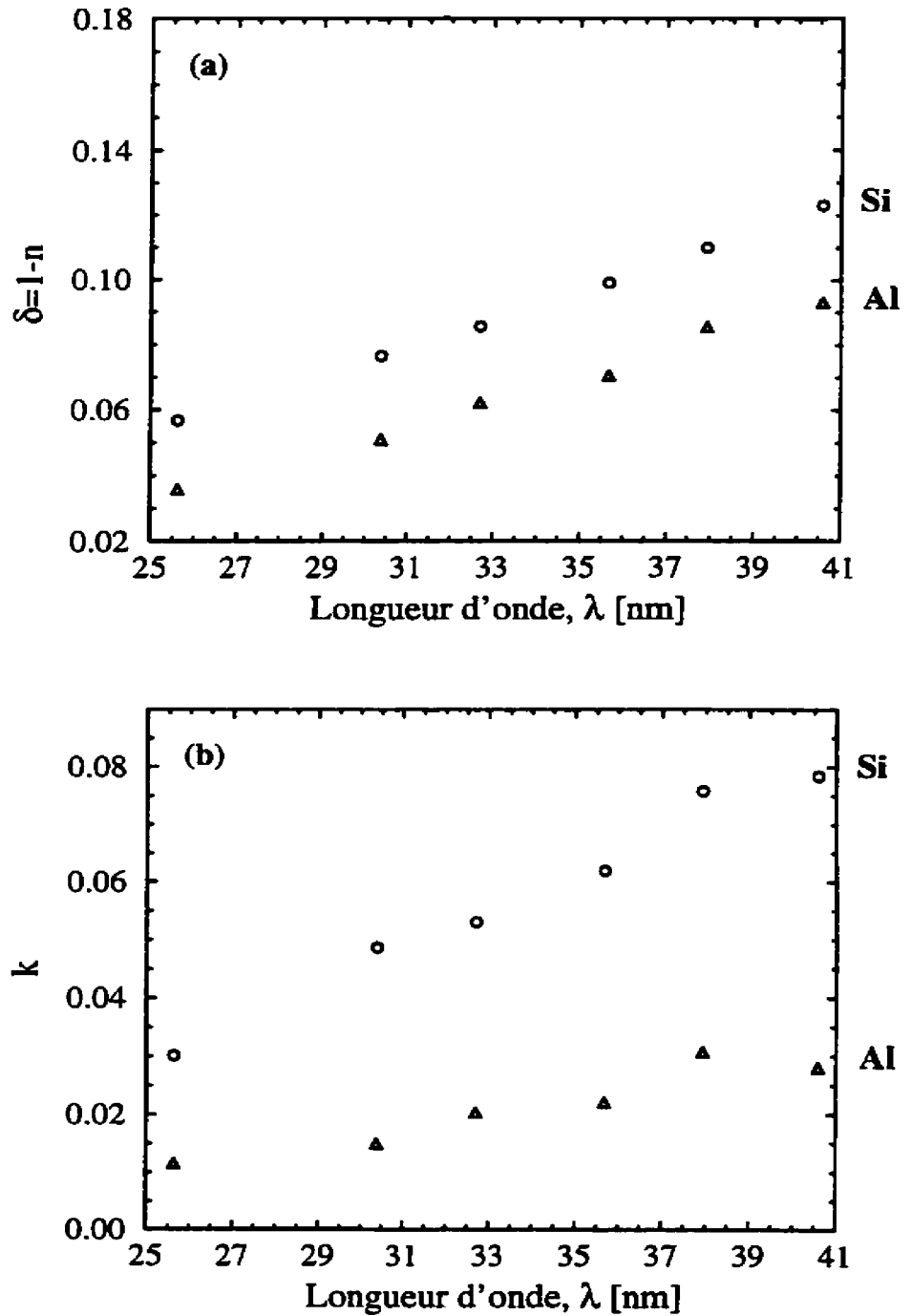


Figure 2.10: Constantes optiques des matériaux non-absorbants données par Windt: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k .

Tableau 2.1: Valeurs de l'énergie de Gibbs ΔG^0 (kJ/mol) pour certains composés de silicium (Si) et de l'aluminium (Al).

Composé	Al	Si
$\Delta G^0(A_xO_y)$	-1491 (Al ₂ O ₃)	-856 (SiO ₂)
$\Delta G^0 \cong \Delta H^0(A_xN_y)$	-318 (AlN)	-647 (Si ₃ N ₄)
$\Delta G^0 \cong \Delta H^0(A_xC_y)$	-203 (Al ₄ C ₃)	-59 (SiC)

Au tableau 2.1, nous présentons les valeurs de l'énergie de Gibbs pour divers composés (oxydes, nitrures, carbures) du silicium (Si) et de l'aluminium (Al). Les données indiquent une très grande tendance pour les réactions entre l'aluminium et les divers contaminants spécialement avec l'oxygène. Nos expériences initiales ont confirmé cette réactivité, même lorsque le vide atteignait $\sim 10^{-8}$ Torr. À la Figure 2.9 nous présentons également les constantes optiques pour Al₂O₃, représentant le cas où l'aluminium (Al) est déposé dans des conditions de vide moins poussé ($\sim 10^{-7}$ Torr) (le taux de dépôt étant de 0.05 nm/s).

Finalement, nous avons conclu que pour la fabrication des miroirs multicouches basés sur l'aluminium (Al) comme le matériau non-absorbant, les conditions de l'ultravide ($\sim 10^{-10}$ Torr) étaient nécessaires. Cela constitue une grande contrainte étant donné que les systèmes pouvant atteindre ce niveau de vide ne sont pas toujours disponibles. Le meilleur choix reste par conséquent le silicium (Si) dont l'activité chimique est plus faible. De plus, le silicium (Si) est un matériau bien connu et largement étudié.

2.8 Matériaux absorbants

Comme nous l'avons spécifié plusieurs fois auparavant, tous les matériaux sont absorbants dans la région spectrale considérée ici. On sait déjà que si on place un matériau absorbant en couches très minces dans les noeuds d'une onde stationnaire, même si ce matériau est absorbant, on peut atteindre une réflectivité assez grande (avec une contrainte à savoir que le deuxième matériau n'absorbe pas). Le deuxième critère nous dit qu'il faut choisir le matériau absorbant de telle manière que la valeur d'absorption ne soit pas trop élevée, fournissant ainsi un grand contraste pour les constantes optiques des matériaux. Notre étude montre que pour le choix du matériau absorbant, il est raisonnable de diviser la région 25-40 nm en deux sous-régions : 25-30 nm et 30-40 nm. Nous avons trouvé que dans ces régions, les combinaisons que nous allons proposer possèdent une réflectivité théorique relativement constante. Ceci facilite la discussion des résultats.

2.8.1 Région spectrale 25-30 nm

À la figure 2.11 (a) (b), nous présentons les constantes optiques (k et $\delta = 1 - n$) pour les matériaux estimés importants dans cette région spectrale. Ce sont le molybdène (Mo), le niobium (Nb), le lanthane (La), l'yttrium (Y), l'or (Au), le carbone (C) et le carbure de bore (B_4C). Les constantes ont été calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomiques donnés par Henke.

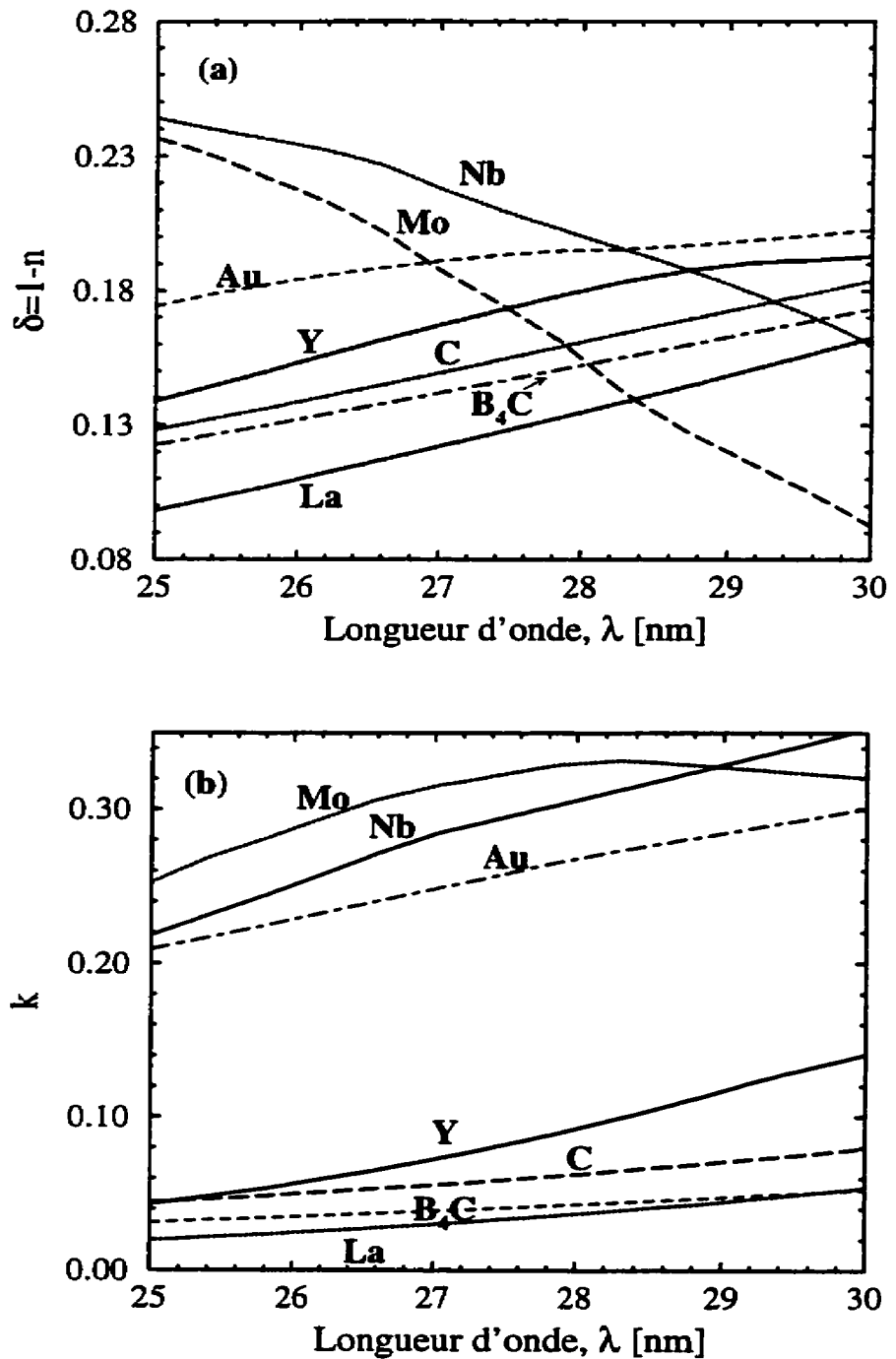


Figure 2.11:

Constantes optiques des matériaux non-absorbants calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique donnés par Henke: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k .

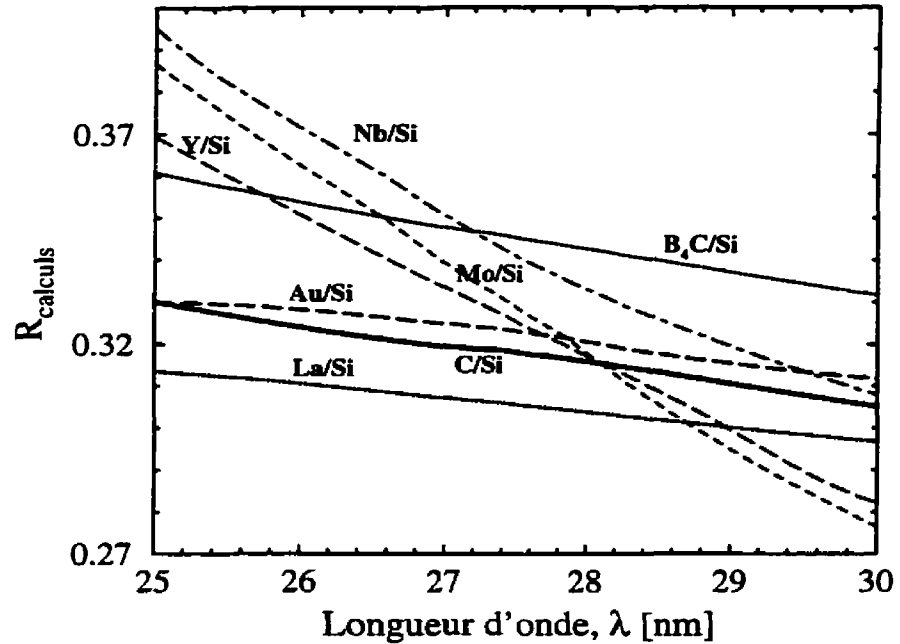


Figure 2.12: Réflectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur le silicium (Si) comme matériau non-absorbant.

À la figure 2.12, nous présentons les courbes de réflectivité théorique à incidence normale pour les combinaisons basées sur ces matériaux absorbants. Les courbes de réflectivité ont été calculées en utilisant le logiciel OMULREF1 que nous avons développé (voir Appendice 1). Ce logiciel optimise les épaisseurs des couches afin de trouver celle qui donnent la plus grande valeur de réflectivité. Dans tous les calculs, on suppose que les interfaces de couches sont idéales et sans rugosité. Le nombre de période utilisé est de 50. La couche de surface est toujours celle du matériau absorbant. Comme matériau non-absorbant on utilise le silicium (Si).

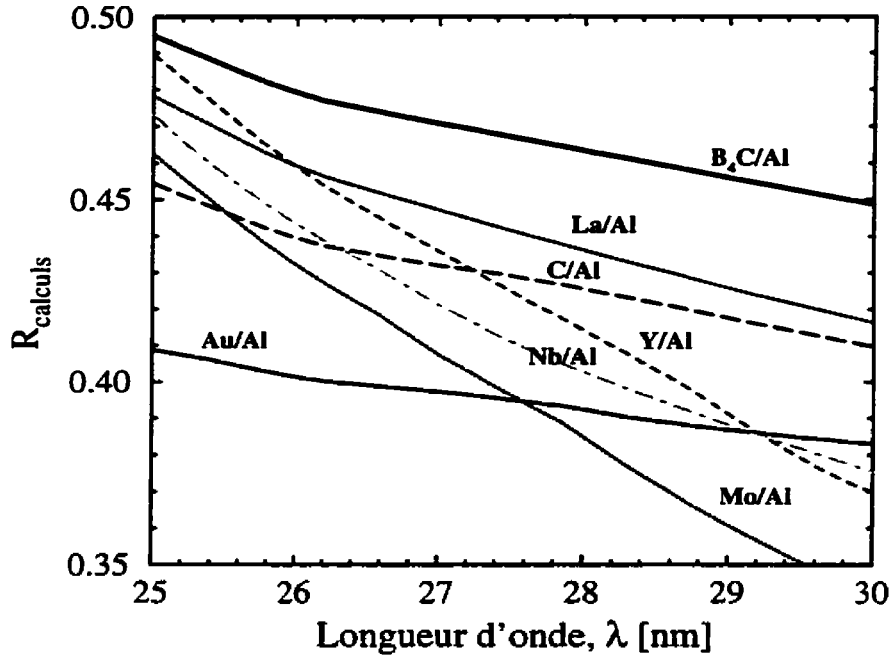


Figure 2.13: Réflectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur l'aluminium (Al) comme matériau non-absorbant.

À titre comparatif, à la figure 2.13, nous présentons les courbes de réflectivité calculées pour l'aluminium (Al) au lieu du silicium (Si). Il est évident que les combinaisons basées sur l'aluminium (Al) donneront une réflectivité plus grande due à leur plus faible absorption et à leur plus grand contraste des constantes optiques. Cependant, pour les raisons discutées plus haut, nous préférons utiliser le silicium (Si) même si la réflectivité théorique obtenue avec ce matériau est moins grande.

Le premier matériau absorbant que nous avons étudié est le molybdène (Mo). Il

est bien connu dû au fait que la combinaison Mo/Si possède une grande réflectivité dans la région 12- 25 nm. Une assez grande réflectivité pourrait également être prévue dans cette région spectrale, surtout entre 25 et 28 nm, même si le contraste des constantes optiques diminue très rapidement pour les longueurs d'ondes plus longues. D'autre part, l'absorption qui augmente rapidement avec la longueur d'onde utilisée, diminuera déjà fortement la réflectivité du miroir autour de 30 nm. Les mêmes considérations peuvent être appliquées pour le niobium (Nb) puisque ces deux matériaux sont semblables du point de vue de leurs constantes optiques. Il est à noter que la combinaison basée sur ce matériau n'a pas été rapportée jusqu'à maintenant, probablement à cause de ses faibles propriétés optiques, qui dans la région spectrale des longueurs d'ondes plus courtes, rendent sa réflectivité moins grande que celle de Mo/Si. Cependant, au-delà de 20 nm, la situation est inversée. Les propriétés optiques du niobium (Nb) deviennent plus avantageuses que celles du molybdène (Mo). En combinaison avec le silicium (Si), il donnera une plus grande réflectivité. En ce qui concerne la compatibilité de matériaux (Mo-Si et Nb-Si), les données thermodynamiques montrent, toutefois, que le molybdène (Mo) serait meilleur. Les enthalpies de formation pour les siliciures du molybdène (Mo) et du niobium (Nb) sont présentées au tableau 2.2. Les valeurs pour le niobium (Nb) sont plus négatives que celles du molybdène (Mo) (pour Nb-Si la valeur la plus négative est de NbSi_3 -64 kJ/mol [21]; pour Mo-Si, la valeur la plus négative est de MoSi_2 -44 kJ/mol [21]). Les énergies de Gibbs pour des oxydes, des nitrures et des carbures (tableau 2.3) indiquent que l'activité chimique du molybdène (Mo) est plus faible que celle du niobium (Nb), bien que ces

Tableau 2.2: Enthalpie de formation ΔH^0 kJ/mol pour divers siliciures de Mo, Nb, La, Y, Au, C, B₄C.

Composé	Mo	Nb	La	Y	Au	C	B ₄ C
$\Delta H^0(A_xSi_y)$ [21]	-44 (MoSi ₂) -39 (Mo ₅ Si ₃)	-64 (Nb ₅ Si ₃)	-77 (La ₂ Si ₃) ⁶	-78 (YSi) ⁶	nd ⁵	nd	nd
$\Delta H^0(A_xSi_y)$ [22]	-132 (MoSi ₂) -312 (Mo ₅ Si ₃)	-452 (Nb ₅ Si ₃)	nd	nd	nd	-64 (SiC)	+8 (SiC)

valeurs soient relativement élevées pour les deux matériaux.

Le lanthane (La) et l'yttrium (Y) sont également très actifs chimiquement. Il faut remarquer que le deuxième matériau a été déjà utilisé en combinaison Mo/Y, mais comme matériau non-absorbant [23-25,17]. Cette combinaison a donné de très bons résultats pour la longueur d'onde ~ 11.4 nm. Cependant, il a été montré que l'activité chimique de l'yttrium (Y) est très grande et que les contaminants dans les systèmes de fabrication peuvent extrêmement diminuer la réflectivité du miroir. Des conséquences semblables peuvent aussi être prévues pour le lanthane (La) (voir les tableaux 2.2, 2.3) - les valeurs de l'énergie de Gibbs pour divers composés (oxydes, nitrides, carbures, siliciures) de ces deux matériaux sont du même ordre. Notons que le lanthane (La) est considéré comme le matériau ayant la plus grande activité chimique de tous les lanthanides.

⁵nd - nondisponible ou n'existe pas.

⁶Valeurs théoriques.

Tableau 2.3: Valeurs de l'énergie de Gibbs ΔG^0 (kJ/mol) pour divers composés de matériaux absorbants.

Composé	Mo	Nb	La	Y	Au	C	B_4C
$\Delta G^0(A_xO_y)$ [22]	-668 (MoO_3)	-1766 (Nb_5Si_3)	-1618 (La_2O_3)	-1817 (Y_2O_3)	+159 (Au_2O_3)	nd ⁷	-1193 (B_2O_3)
$\Delta G^0(A_xN_y)$ [22]	-50 (Mo_2N)	-218 (Nb_2N)	-234 (LaN)	-269 (YN)	nd	+427 (CN)	-226 (BN) +427 (CN)
$\Delta G^0(A_xC_y)$ [22]	-47 (Mo_2C)	-182 (Nb_2C)	-89 (LaC_2)	-109 (YC_2)	nd	nd	-71 (B_4C)

Pour ces raisons, nous pensons que la fabrication de miroirs à base de ces matériaux serait compliquée même si leurs combinaisons donnent une réflectivité théorique assez élevée. Les matériaux tels que l'or (Au), le carbone (C) et le carbure de bore (B_4C) sont, selon nous, les meilleurs pour la fabrication de miroirs multicouches. D'abord, parce qu'ils ont une activité chimique faible. D'ailleurs, les courbes de réflectivité théorique pour les combinaisons Au/Si, C/Si, B_4C /Si sont très monotones dans toute la région 25-30 nm, tandis que la réflectivité théorique de Nb/Si, Mo/Si, et Y/Si diminue très rapidement pour les longueurs d'onde plus longues. Il est toutefois difficile à prévoir lequel de ces matériaux - Au, C, ou B_4C - serait le plus avantageux puisqu'il n'y a pas de grande différence au point de vue de leur réflectivité théorique. À première vue, B_4C serait le meilleur grâce à la plus grande réflectivité de la combinaison B_4C /Si. Notons que les constantes optiques,

⁷nd - nondisponible ou n'existe pas.

calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique sont très sensibles à la valeur de densité que l'on utilise. Néanmoins, une meilleure réflectivité théorique de la combinaison B_4C/Si ne signifie pas que cette combinaison sera plus avantageuse en pratique que celle de C/Si . C'est ce qui est illustré à la figure 2.14 où nous présentons les mêmes calculs de réflectivité pour B_4C/Si , en utilisant les constantes optiques calculées des facteurs de diffusion atomique, mais avec une valeur de densité différente. On constate que si la valeur de densité est 2.40 g/cm^3 au lieu de 2.52 g/cm^3 (la valeur de densité du matériau sous la forme solide), il n'y a pas de différence remarquable entre les valeurs de réflectivité pour C/Si et B_4C/Si . Étant donné qu'il est très difficile de prévoir la valeur de la densité d'une couche déposée, surtout s'il s'agit de couches très minces, comme dans notre cas, la réflectivité un peu plus grande de B_4C/Si ne signifie pas qu'il soit plus avantageux. Dans nos calculs, nous avons utilisé les valeurs qui correspondent à celles du matériau sous la forme solide.

Il faut également noter que la fabrication d'une couche du matériau simple, comme le carbone (C), semble plus facile que celle d'un composé tel que le carbure de bore (B_4C). La variation de composition atomique peut altérer les constantes optiques de ce composé, ce qui conduirait à des valeurs de réflectivité moins grandes que prévues. L'autre raison qu'il faut considérer, est que les facteurs de diffusion ne tiennent pas compte de l'interaction entre les atomes du matériau. Ces interactions peuvent toutefois devenir importantes dans la région spectrale considérée ici. Ceci est peut-être peu important pour les

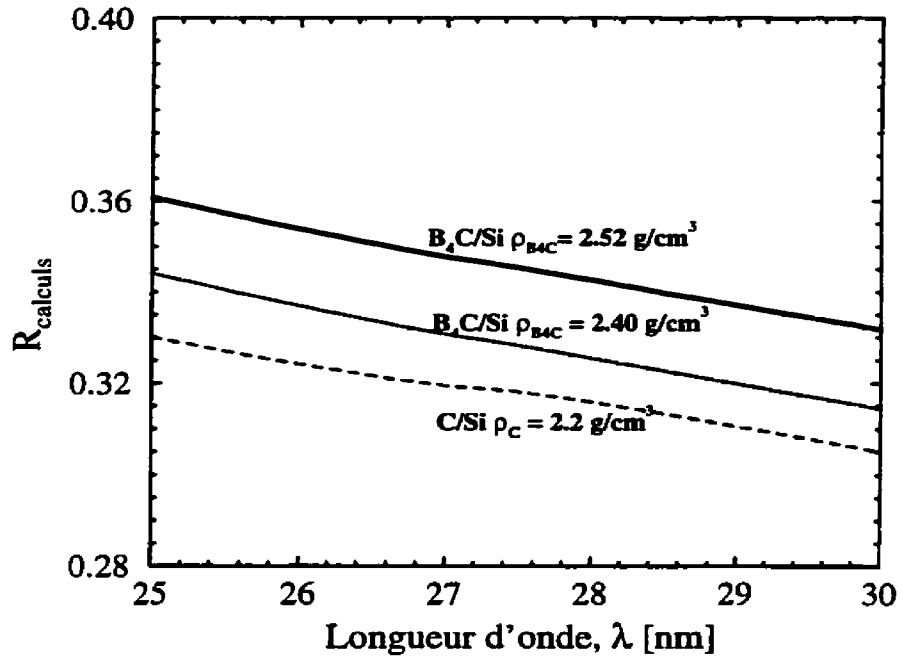


Figure 2.14: Influence de la densité sur la réflectivité des miroirs $\text{B}_4\text{C}/\text{Si}$.

matériaux simples (voir [6], où il a été démontré que, dans le cas de l'or (Au), les facteurs de diffusion constituent encore une bonne approximation même pour les longueurs d'onde aussi grandes que 50 nm). Dans le cas des composés, comme le carbure de bore (B_4C), ces interactions pourraient altérer les constantes optiques ou au moins rendre leur contrôle très difficile. À ce point de vue, la combinaison C/Si est plus prometteuse. D'autre part, il faut tenir compte des données thermodynamiques suggérant que la formation du carbure de silicium (SiC) aux interfaces est plus probable pour C/Si. En effet, l'enthalpie de formation de ce composé est négative (-64 kJ/mol) [22] tandis que pour $\text{B}_4\text{C}/\text{Si}$, cette valeur est positive ($+8 \text{ kJ/mol}$) [22]. En conclusion, nous pensons que les deux combi-

naisons pourraient être également utiles pour la fabrication des miroirs multicouches dans cette région spectrale. Étant donné que la combinaison B_4C/Si est déjà connue [26] (les résultats ont été rapportés pour les longueurs d'onde 18 nm et 23.6 nm), nous préférons celle de C/Si .

Le troisième matériau, l'or (Au), est très populaire et est souvent utilisé dans le domaine optique des rayons X pour diverses applications. Ses constantes optiques dans cette région spectrale sont bien connues. De surcroît, de nombreux travaux ont traité des propriétés des couches minces d'or (Au) fabriquées à l'aide de diverses méthodes de fabrication. Par exemple, il a été montré que les couches ayant les épaisseurs inférieures à 6 nm ont une structure anisotrope et ne sont pas continues [27,28]. Évidemment cela influencera les propriétés optiques des couches ayant des épaisseurs moins grandes que cette valeur. Il a également été montré qu'au point de vue de la structure de couche, le carbone est le meilleur matériau. La valeur critique de l'épaisseur pour ce matériau est de 3 nm, c'est-à-dire que des couches deux fois plus minces, ayant les propriétés optiques souhaitées, peuvent être fabriquées. De plus, il est bien connu que des couches minces de carbone (C) ont une faible rugosité. Les couches de carbone sont parfois déposées sur des substrats de silicium avant le dépôt des multicouches, ce qui permet de diminuer la rugosité du substrat [11].

Ces considérations indiquent que la combinaison la plus prometteuse pour cette région spectrale serait C/Si . C'est le choix pour lequel nous avons opté. La combinaison C/Si

est aussi intéressante si on considère le bas prix du carbone (C) par rapport à celui de l'or (Au).

2.8.2 Région spectrale 30-40 nm

Notre étude montre que, pour la fabrication des couches absorbantes, il faut utiliser les matériaux qui eux-mêmes réfléchissent la lumière efficacement. Ces matériaux sont l'osmium (Os), le rubidium (Ru), le manganèse (Mn), l'iridium (Ir) et le platine (Pt). À la figure 2.15 (a) (b), nous présentons les constantes optiques pour ces matériaux. Ces constantes ont été calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique. Le grand contraste des constantes optiques pour ces matériaux est présent dans toute la région, surtout autour de 40 nm (figure 2.16). Puisque l'absorption du matériau non-absorbant est encore assez faible, de grandes valeurs de réflectivité (jusqu'à 40%) peuvent être prévues. Des valeurs théoriques encore plus grandes (50%) seraient obtenues si on utilisait l'aluminium (Al) au lieu du silicium (Si) (figure 2.17). Au tableau 2.4 nous présentons les données thermodynamiques pour divers composés de Ru, Os, Mn, Ir et Pt.

Notons que les données sont semblables pour tous les matériaux. Dans ce cas, la combinaison possédant la plus grande réflectivité indiquera le meilleur choix des matériaux. Cependant, les données thermodynamiques concernant la formation des oxydes (tableau 2.4), montrent que le manganèse (Mn) serait moins bon que les autres matériaux. À première vue, la combinaison Os/Si est à préférer puisque sa réflectivité est presque con-

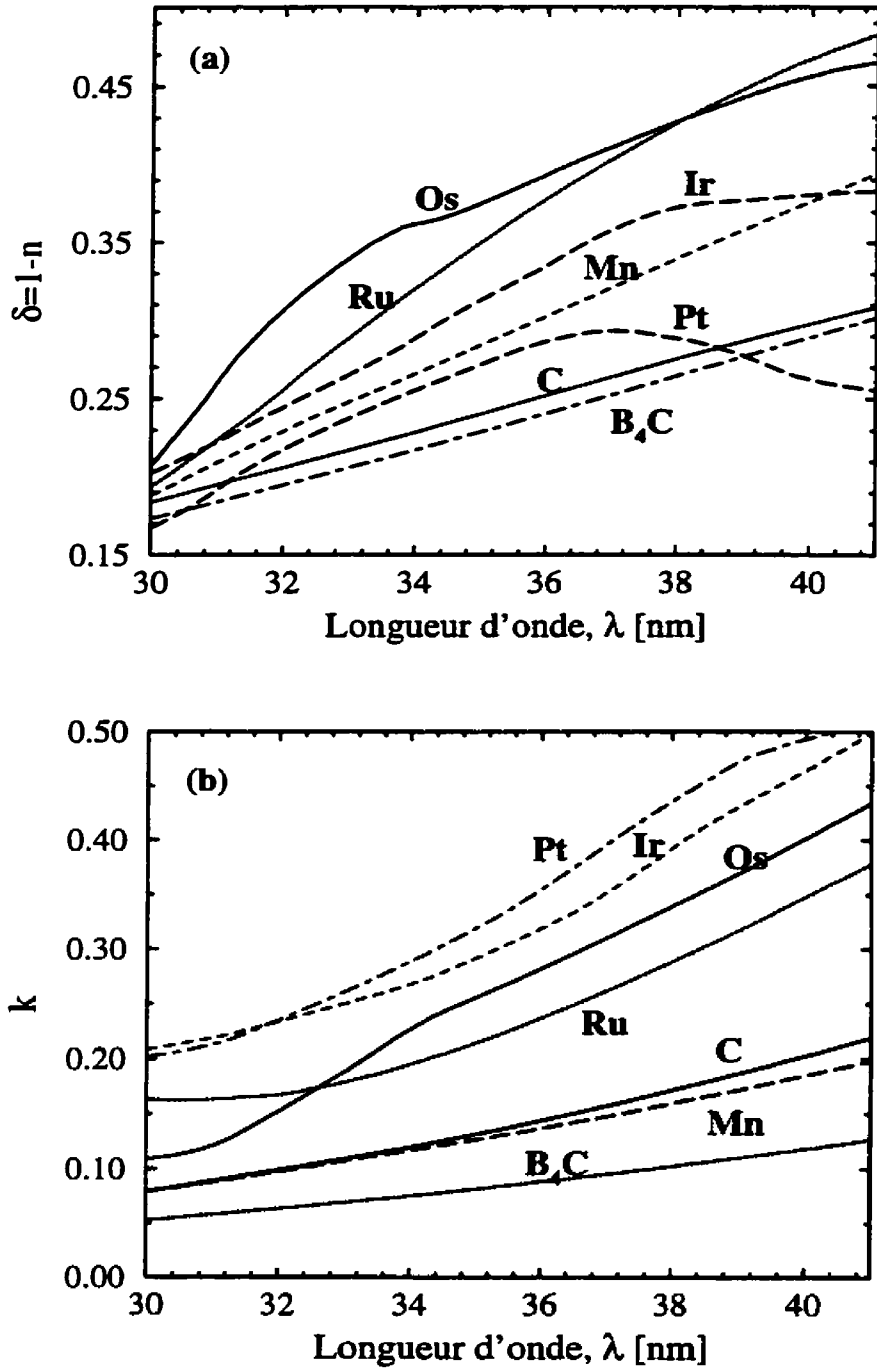


Figure 2.15: Constantes optiques des matériaux absorbants calculées en utilisant les facteurs de diffusion atomique donnés par Henke: (a) courbes de $\delta = 1 - n$ et (b) courbes de k .

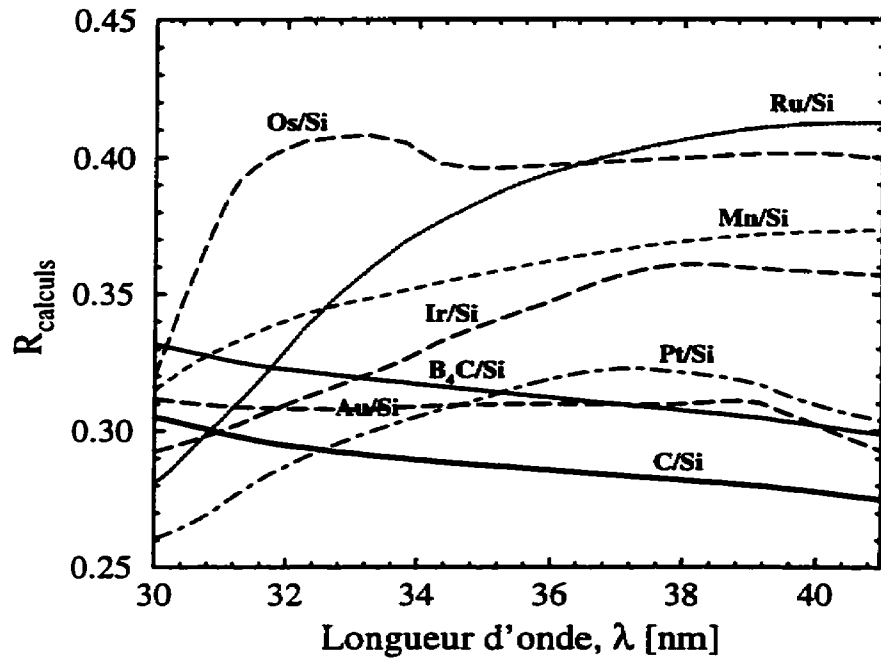


Figure 2.16: Réflectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur le silicium (Si) comme matériau non-absorbant.

stante au-delà de 32 nm. Cependant, celle de Ru/Si est plus grande pour les longueurs d'ondes plus longues que 37 nm. Les seuls résultats expérimentaux, concernant les miroirs pour cette région spectrale, ont été rapportés par Kozhevnikov *et al* [29]. Ce sont les résultats pour la combinaison Os/Si. La réflectivité maximale obtenue est seulement de 20% pour la longueur d'onde 38 nm. Une telle différence entre les données expérimentales et théoriques a été expliquée par la contamination des couches des miroirs due aux contaminants présents dans le système de fabrication.

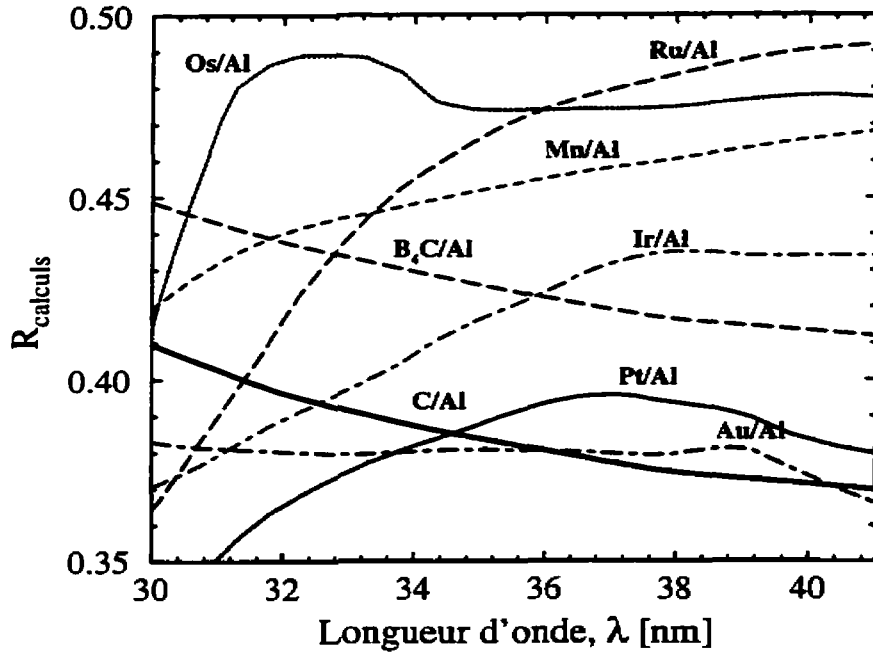


Figure 2.17: Réflectivité théorique à incidence normale de diverses combinaisons basées sur l'aluminium (Al) comme matériau non-absorbant.

Notons que les trois combinaisons discutées plus haut, C/Si, B₄C/Si et Au/Si, ayant les réflectivités théoriques d'environ 30% dans la région spectrale 25-30 nm, montrent des réflectivités aussi grandes dans la région spectrale 30-40 nm. Les courbes des constantes optiques ainsi que les réflectivités théoriques sont très monotones dans toute la région 25-40 nm. Par ailleurs, les expériences initiales nous ont montré que les valeurs de réflectivité pour les longueurs d'ondes dans la région 25-30 nm sont en bon accord avec celles des résultats théoriques. Cela suggère que des résultats semblables peuvent probablement être obtenus même pour les longueurs d'ondes plus longues, soit jusqu'à 40 nm. C'est

Tableau 2.4: Données thermodynamiques ΔG^0 et ΔH^0 (kJ/mol) pour divers composés de Ru, Os, Mn, Ir et Pt.

Composé	Ru	Os	Mn	Ir	Pt
ΔH^0 [21] (A_xSi_y)	-50 ($RuSi$)	-29 ($OsSi$) ⁸	-40 ($MnSi$)	-39 ($IrSi$)	-62 (Pt_2Si)
ΔG^0 [22] (A_xO_y)	-253 (RuO_2)	-303 (OsO_4)	-1282 (Mn_3O_4)	-187 (IrO_2)	nd ⁹

la raison pour laquelle nous avons continué nos études avec la combinaison C/Si dans la région spectrale 30-40 nm. Dans les chapitres qui suivent, nous présenterons les résultats de la caractérisation de cette combinaison à l'aide de diverses techniques, telles que la fabrication des miroirs, les mesures de réflectivité à incidence normale, l'étude par diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD), l'analyse par microscopie électronique à transmission (TEM), l'étude par diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD), l'étude de la résistance des miroirs aux températures élevées (par HAXRD et TEM) et l'étude de surface (composition par ESCA, profilométrie par AES et ESCA).

⁸Valeurs théoriques.

⁹nd - non disponible ou n'existe pas.

Bibliographie

- [1] voir, par exemple, O.S. Heavens, "Optical Properties of Thin Films", (Dover, New York 1965); M. Born et E. Wolf, "Principles of Optics", 5-th edition (Pergamon Press, 1975).
- [2] voir, par exemple, P. Beckman, "The Scattering of Electromagnetic Waves by Rough Surfaces" (Pergamon Press, New York, 1963).
- [3] voir, par exemple, R.W. James, "The Optical Principles of the diffraction of X-Rays" (Ox Bow Press, Woodbridge, CT 1982).
- [4] B.L. Henke, P. Lee, T.J. Tanaka, R.L. Shimabukuro et B. K. Fujikava, *At. Nucl. Data Tables* **27**, 1 (1982).
- [5] B.L. Henke, E.M. Gullikson et J.C. Davis, *At. Nucl. Data Tables* **54**, 181 (1993).
- [6] E.M. Gullikson, P. Denham, S. Mrowka et J.H. Underwood, *Phys. Rev. B* **49**, 16283 (1994).

-
- [7] D.L. Windt, W.C. Cash, M. Scott, P. Arendt, B. Newman, R.F. Fisher, A.B. Swartzlander, P.Z. Takacs et J.M. Pinneo, *Appl. Opt.* **27**, 279 (1988).
- [8] D.L. Windt, W.C. Cash, M. Scott, P. Arendt, B. Newman, R.F. Fisher et A.B. Swartzlander, *Appl. Opt.* **27**, 246 (1988).
- [9] D.L. Windt, *Appl. Opt.* **30**, 15 (1991).
- [10] B.A. Vidal et J.C. Marfaing, *J. Appl. Phys.* **65**, 3453 (1989).
- [11] M.P. Bruijn, J. Verhoeven et M.J. Van der Wiel, *Nucl. Instrum. Meth.* **219**, 603 (1984).
- [12] E. Spiller, *AIP. Conference proceedings No. 75*, 124 (1981).
- [13] E. Spiller, *Appl. Phys. Lett.* **20**, 365 (1972).
- [14] E. Spiller, *Appl. Opt.* **15**, 2333 (1976).
- [15] R.-P. Haelbich et C. Kunz, *Opt. Commun* **17**, 287 (1976).
- [16] P.A. Kearney, J.M. Slaughter et C.M. Falco, *Opt. Engin.* **30**, 1076 (1991).
- [17] C. Montcalm, P.A. Kearney, J.M. Slaughter, B.T. Sullivan, M. Chaker, H. Pépin et C.M. Falco, *Appl. Opt.* **35**, 5134 (1996).
- [18] J.M. Slaughter, D.W. Shulze, C.R. Hills, A. Mirons, R. Stalio et C.M. Falco, *J. Appl. Phys* **76**, 2144 (1994).

- [19] M.B. Stearns, C.-H. Chang et D.G. Stearns, *J. Appl. Phys.* **71**, 187 (1992).
- [20] S. Ogura, M. Nube, Y. Watanabe, M. Hayashide et T. Iizuka, *SPIE Vol. 984 X-Ray Multilayers for Diffractometers, Monochromators, and Spectrometers* (1988).
- [21] F.R. de Boer, R. Boom, W.C.M. Mattens, A.R. Miedema et A.K. Niessen, "Cohesion in metals: transition metal alloys," Vol.1 of Cohesion and Structure Series, F.R. de Boer et D.G. Pettifor, eds. (North-Holland, New York, 1998).
- [22] O. Kubaschewski, C.B. Alcock et P.J. Spencer, "Materials thermochemistry," 6th edition (Pergamon Press 1993).
- [23] P. Boher, L.Hennet et P.N. Houdey, *Proc. SPIE 1345*, 198 (1990).
- [24] C. Montcalm, B.T. Sullivan, M. Ranger, J.M. Slaughter, P.A. Kearney, C.M. Falco et M. Chaker, *Opt. Lett.* **19**, 1173 (1994).
- [25] C. Montcalm, B.T. Sullivan, C. Duguay, M. Ranger, W. Steffens, H. Pépin et M. Chaker, *Opt. Lett.* **20**, 1450 (1995).
- [26] J. M. Slaughter, B.S. Medower, R.N. Watts, C.Tarrio, T.B. Lucatorto et C.M. Falco, *Opt. Lett.* **19**, 1786 (1994).
- [27] M. Yamamoto et T. Namioka, *Appl. Opt.* **31**, 1612 (1992).
- [28] M. Yanagihara, J. Cao, M. Yamamoto, A. Arai, S. Nakayama, M. Mizuide et T. Namioka, *Appl. Opt.* **30**, 2807 (1991).

- [29] I.V. Kozhevnikov, L.L. Balakireva, A.I. Fedorenko, I.A. Kopealets, V.E. Levashov, A.N. Stetsenko, I.I. Struk et A.V. Vinogradov, *Opt. Commun.* **125**, 13 (1996).

Chapitre 3

Fabrication des miroirs multicouches C/Si et mesures de leur réflectivité à incidence normale

3.1 Fabrication des miroirs

3.1.1 Méthodes de fabrication des couches minces

L'évaporation et la pulvérisation sont les méthodes les plus couramment utilisées pour la fabrication des couches minces. Le but de ces deux méthodes est de transférer les atomes d'un matériau suivant la direction *source-substrat*, où une couche mince se formera. La différence entre ces deux méthodes réside dans la manière avec laquelle les atomes sont éjectés de la surface de la source. Pendant l'évaporation les atomes quittent la surface de façon thermique, tandis que pendant la pulvérisation ils la quittent suite au bombardement de la surface par le faisceau ionique. Les descriptions détaillées des processus, qui ont lieu

pendant l'évaporation ou la pulvérisation, peuvent être trouvées dans plusieurs livres traitant des couches minces [1].

Les deux méthodes sont connues depuis un siècle. Jusqu'aux années soixante, l'évaporation a néanmoins été la méthode préférée. En effet, la contamination des couches par le gaz de pulvérisation pendant les dépôts a été le plus grand désavantage de la méthode de pulvérisation. Ultérieurement, la disponibilité des gaz de pulvérisation purs ainsi que l'introduction de nouveaux équipements ont rendu la méthode de pulvérisation aussi populaire que la méthode d'évaporation. Les exigences plus sévères de l'industrie des composants micro-électroniques ont également contribué à sa popularité. En effet, le contrôle précis de la stoechiométrie des alliages pendant les dépôts est réalisé beaucoup plus facilement pendant la pulvérisation. Présentement, malgré la connaissance incomplète de cette méthode, la pulvérisation est une technologie très répandue et couramment utilisée.

Ces deux méthodes sont aussi le plus souvent utilisées pour la fabrication des miroirs multicouches pour les rayons X. Bien que les premiers miroirs aient été fabriqués par la technique d'évaporation [2], plusieurs travaux ont montré, depuis ce temps, que les multicouches déposées par cette méthode sont de moins bonne qualité [3,4]. Notons que l'évaporation est habituellement faite par un faisceau d'électrons permettant un meilleur contrôle sur le processus de dépôt. La méthode de pulvérisation est celle qui a permis d'obtenir les meilleurs résultats. Diverses études montrent que les couches déposées en utilisant cette technique, ont une rugosité inférieure à celles des couches déposées par

évaporation (voir, par exemple, [4]). Ceci est dû à la mobilité de surface des atomes déposés qui est plus grande dans le cas des atomes pulvérisés que des atomes évaporés (voir, par exemple, [3,5]). Il faut toutefois remarquer que dans les conditions optimales de fabrication, les miroirs déposés par cette méthode peuvent avoir des qualités comparables à celles des miroirs fabriqués par la technique de pulvérisation. La mobilité moins grande de surface des atomes déposés peut être compensée, par exemple, en augmentant la température du substrat [3,5]. Le taux de dépôt est également important [3,5].

Il existe deux principaux types de techniques pour la fabrication des couches minces par pulvérisation. Ce sont la technique de décharge en configuration de diode, de triode et de magnétron CD (courant direct) et RF (radio fréquence) et la technique de pulvérisation par faisceau ionique. Dans les deux cas, la pulvérisation de surface est décrite par les mêmes processus physiques, même si toutes les configurations sont plus ou moins différentes au point de vue de divers paramètres de dépôt.

Jusqu'à maintenant, les méthodes les plus appliquées pour la fabrication des miroirs multicouches ont été les méthodes de pulvérisation à l'aide de magnétron (CD et RF) et à l'aide du canon d'ions (pulvérisation par faisceau ionique). Bien que quelques travaux aient suggéré que la pulvérisation à l'aide du magnétron RF procure de meilleurs résultats (voir, par exemple, [4]), toutes les méthodes sont successivement appliquées et donnent de très bons résultats. La qualité des miroirs fabriqués par ces méthodes est toujours supérieure à celle des miroirs fabriqués à l'aide d'évaporation par faisceau électronique.

Pour notre étude expérimentale, nous avons choisi la méthode de pulvérisation par faisceau ionique. Tout d'abord, ce choix a été fait en considérant que le taux de dépôt obtenu par pulvérisation est très faible (le taux de dépôt pour le carbone est d'environ 0.01 nm/s). Étant donné que les épaisseurs des couches doivent être de l'ordre de 5 nm, ce faible taux de dépôt nous permettra de contrôler les épaisseurs de manière très précise. D'autre part, les expériences initiales utilisant nos magnétons CD ont indiqué que la fabrication de couches de matériaux, tels que le carbone (C) ou le silicium (Si), exige une pression d'argon (le gaz de travail) très élevée, supérieure à 10 mTorr. En ce qui concerne la pression d'argon, plusieurs travaux ont montré que la qualité des multicouches fabriquées à l'aide des magnétons dépend de la pression du gaz de travail (voir, par exemple, [5]). Si la pression du gaz est très élevée, elle peut énormément diminuer la mobilité de surface des atomes déposés, à cause des collisions entre ces atomes et les ions du gaz. En conséquence, la rugosité des interfaces peut devenir très élevée. Par contre, la pression du gaz dans la technique de fabrication à l'aide d'un canon d'argon est beaucoup plus petite. En tenant compte de ces considérations, nous avons décidé que pour la fabrication de nos miroirs, la méthode de pulvérisation par faisceau ionique constituait le meilleur choix.

Dans la section qui suit, nous décrivons la partie expérimentale de la fabrication des miroirs. Nous allons présenter l'équipement expérimental: la description du système à vide et du dispositif expérimental. La description de l'étalonnage de l'épaisseur des couches minces sera également détaillée.

3.1.2 Description du système à vide

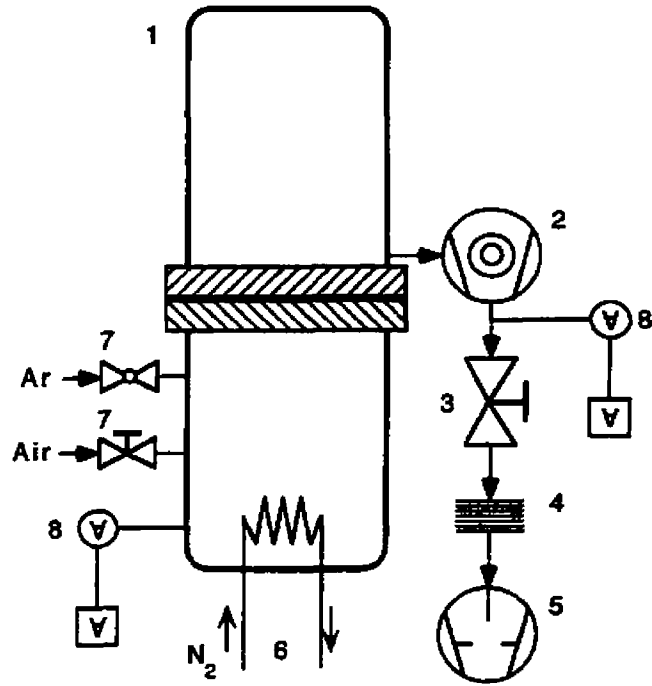


Figure 3.1: Schéma du système à vide utilisé pour la fabrication des couches minces: (1) enceinte, (2) pompe turbomoléculaire, (3) valve manuelle, (4) tube flexible, (5) pompe mécanique, (6) serpentin pour l'azote liquide, (7) vannes d'admission d'air et d'argon et (8) appareils de mesures de vide.

À la figure 3.1, nous présentons le schéma, montrant les composantes principales du système à vide. À la base du système, se trouve une enceinte en acier inoxydable (1) ayant un volume de 0.22 m^3 . Le pompage du vide est effectué grâce à une pompe mécanique (5) et une pompe turbomoléculaire (2). La pompe mécanique et la pompe turbomoléculaire sont connectées entre elles par un tube flexible (4). La pompe turbo-

moléculaire est connectée directement à l'enceinte (1). Comme pompe mécanique, on utilise la pompe rotative à palettes de LEYBOLD-HERAEUS TRIVAC D16A avec un débit de pompage $14.6 \text{ m}^3/\text{h}$ (52.6 l/s). Comme pompe turbomoléculaire, nous utilisons celle de LEYBOLD-HERAEUS TURBOVAC 360 avec un débit de $1242 \text{ m}^3/\text{h}$ (345 l/s). À l'aide de ces deux pompes et après une durée de pompage d'environ 12 heures, on peut atteindre des pressions de $\sim 1 \cdot 10^{-6}$ Torr. Il est possible, toutefois, d'atteindre des niveaux de vide plus poussés. Tout d'abord, on effectue un étuvage de l'enceinte pendant quelques heures à des températures d'environ 100°C . Cette opération permet de libérer les gaz adsorbés sur les murs de l'enceinte. Par conséquent, des molécules libérées sont éliminées à l'aide des pompes à vide. La pression typique obtenue après cette opération est d'environ $1 \cdot 10^{-7}$ Torr.

Finalement, l'équipement pour le pompage cryogénique est également disponible. Ce pompage est effectué à l'aide d'un serpentín (6) qui permet de faire circuler l'azote liquide dans le système (la température typique dans le serpentín est de -190°C). Cette méthode de pompage permet de condenser les gaz dans l'enceinte. Cependant, aussitôt que l'on arrête la circulation de l'azote liquide, la pression dans le système va remonter à cause de la libération des molécules condensées. Il est donc nécessaire de maintenir cette circulation d'azote liquide pendant le temps de dépôt. En utilisant ce type de pompage, nous sommes capable de descendre jusqu'à des pressions d'environ $7.5 \cdot 10^{-8}$ Torr. Le dépôt des couches a été effectué dans une atmosphère d'argon de $4 \cdot 10^{-4}$ Torr de pression.

3.1.3 Dispositif pour la fabrication des miroirs

À la figure 3.2, nous présentons le schéma expérimental utilisé pour la fabrication des miroirs. La pulvérisation des cibles (1) et (2) est effectuée à l'aide d'un canon d'argon (3). Les deux cibles peuvent tourner autour de l'axe verticale XX' , ce qui permet de changer alternativement les cibles de pulvérisation (1) ou (2). La distance typique entre le canon et la cible est de 10 cm. L'angle d'incidence du faisceau d'ions est de 45 degrés. Cette configuration permet d'avoir des taux de dépôt respectivement d'environ 0.01 nm/s et 0.05 nm/s pour le carbone et le silicium. Le masque mobile (6) permet d'empêcher le dépôt du matériau (le carbone (C) ou le silicium (Si)) aussitôt que l'épaisseur souhaitée est atteinte.

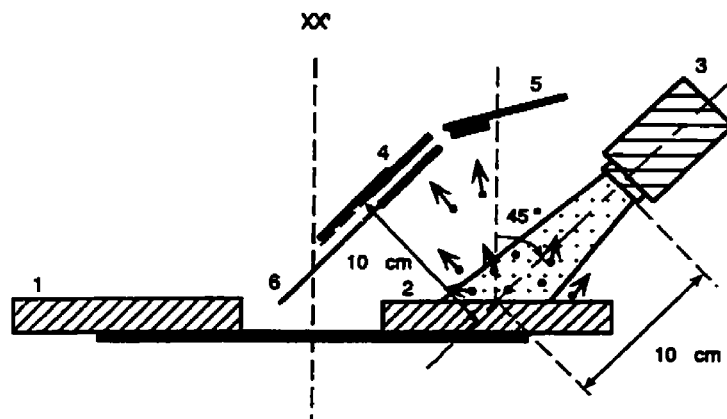


Figure 3.2: Schéma du dispositif pour la fabrication des miroirs: (1) et (2) cibles, (3) canon d'argon, (4) substrat de silicium (Si), (5) senseur d'épaisseur piézo-électrique et (6) masque mobile.

Des couches minces de platine ont été déposées en utilisant des configurations géométriques semblables, le taux de dépôt étant de 0.05 nm/s. Les taux de dépôt sont mesurés à l'aide du senseur d'épaisseur piézo-électrique (5). Avec ces valeurs, le temps typique de fabrication d'un miroir multicouche de C/Si, constitué de 50 couches, est d'environ 7 heures. Toutes les couches ont été déposées sur des substrats de silicium Si(001) (4). La pression initiale de base dans le système, au commencement du dépôt des couches, a été de $1 \cdot 10^{-5}$ Torr. Pendant la pulvérisation, la pression d'argon dans le système monte jusqu'à une valeur de $4 \cdot 10^{-4}$ Torr.

3.1.4 Étalonnage des épaisseurs

Les épaisseurs des couches ont été calibrées en mesurant les épaisseurs des couches de référence qui ont été déposées dans des conditions de dépôt identiques. Afin de fabriquer un échantillon de référence, une couche unique est déposée sur un substrat de silicium (Si) dont une petite partie est couverte par une plaque mince d'un matériau (une plaque de silicium, de verre, etc.) (voir figure 3.3 (1)). Nous notons alors la valeur de l'épaisseur mesurée avec le moniteur de dépôt. Après le dépôt (figure 3.3 (2)), cette plaque est enlevée et nous mesurons l'épaisseur de la couche formée (figure 3.3 (3)) en utilisant le profilomètre DEKTAK II. Par la suite, les résultats des mesures effectuées à l'aide du profilomètre sont comparés à ceux qui ont été indiqués par le moniteur du senseur lors du dépôt.

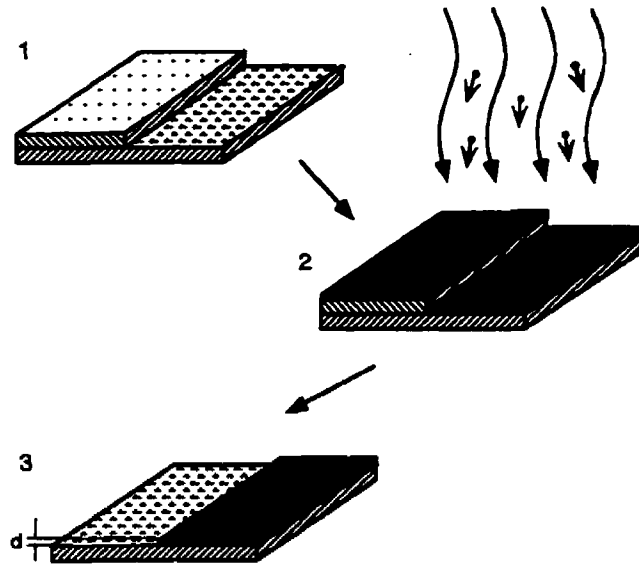


Figure 3.3: Calibrage des épaisseurs: (1) le substrat est couvert par une plaque mince de silicium, (2) le dépôt de couche et (3) la plaque de silicium est enlevée.

Il est important que la marche formée soit très abrupte. Il faut donc avoir un très bon contact entre le substrat où la couche est déposée et le matériau couvrant ce substrat. Nous avons trouvé que les meilleurs résultats sont obtenus si le substrat est couvert par une plaque mince de silicium. Dans ce cas, les marches formées sont les plus abruptes.

Un exemple typique des mesures d'épaisseur à l'aide du profilomètre DEKTAK I est présenté à la figure 3.4. Notons que ce type d'étalonnage est très approximatif. On a une précision d'environ 2 nm, ce qui n'est évidemment pas suffisant pour les exigences de fabrication des miroirs multicouches. De plus, l'étalonnage qui permet d'obtenir cette précision, peut être effectué seulement pour les épaisseurs de couches qui sont au-delà de

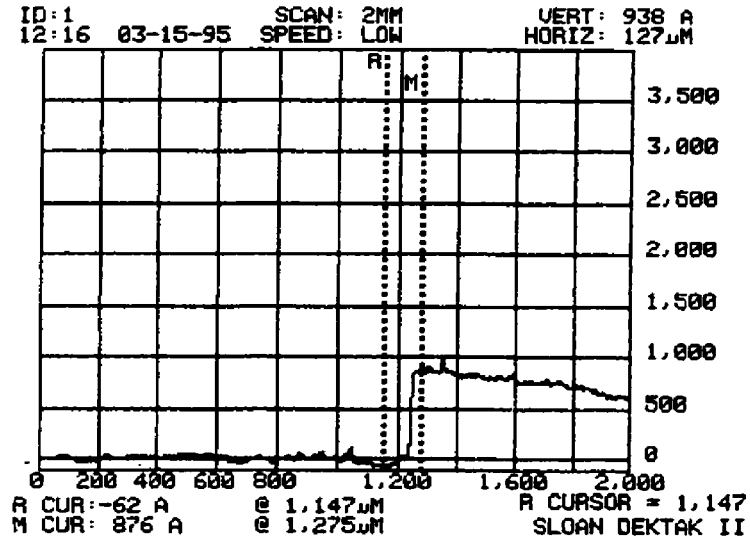


Figure 3.4: Exemple des mesures d'épaisseur d'une couche à l'aide du profilomètre DEKTAK II. Épaisseur de la couche est de 93.8 nm.

~ 5 nm. Les couches de miroirs multicouches ont souvent des épaisseurs plus petites (4.7 nm pour des photons de 25.6 nm), surtout celles de carbone et pour les longueurs d'ondes plus courtes. Il est donc nécessaire d'extrapoler la courbe d'étalonnage vers la région des épaisseurs plus faibles, ce qui est toujours une cause de grande incertitude dans les valeurs des épaisseurs des couches fabriquées.

Dans ce qui suit, nous passons à la discussion des mesures de réflectivité des miroirs. Nous allons donner la description de l'appareillage que nous avons utilisé pour des mesures de réflectivité et nous allons expliquer le design des miroirs. Nous allons également présenter les résultats des mesures de réflectivité obtenus avec la combinaison C/Si dans la région spectrale 25-40 nm. Les réflectivités mesurées expérimentalement vont être

comparées à celles des miroirs constitués d'une couche simple de platine (Pt).

3.2 Mesures de la réflectivité à incidence normale

3.2.1 Description de l'appareil pour les mesures de réflectivité

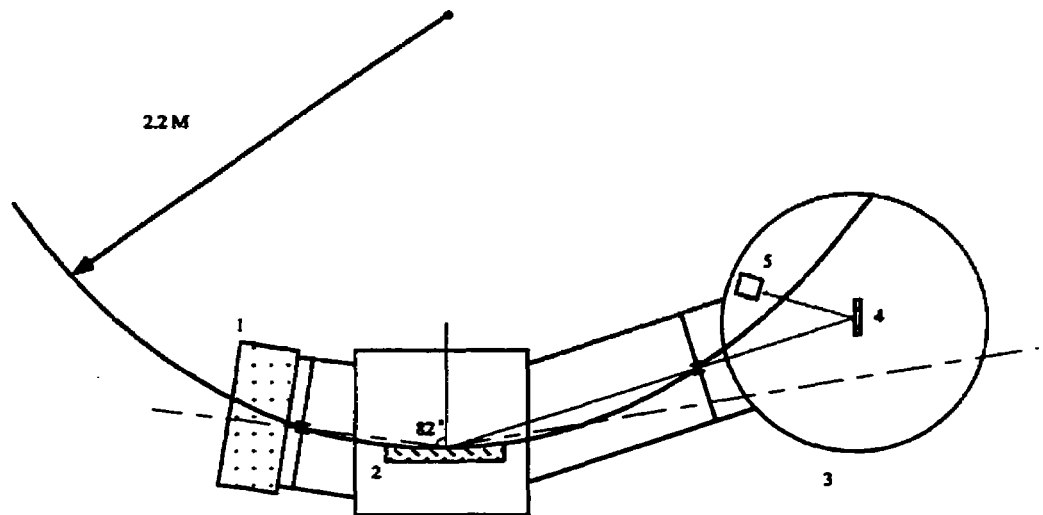


Figure 3.5: Schéma de l'appareil pour les mesures de réflectivité: (1) source de la lumière des rayons X mous, (2) chambre principale avec réseau de diffraction, (3) chambre pour les mesures de réflectivité, (4) miroir et (5) détecteur.

L'appareil permettant les mesures de réflectivité est essentiellement constitué du monochromateur à incidence rasante, McPherson 2.2 m (82 degrés d'incidence, réseau de diffraction 600 mm^{-1}) (voir figure 3.5).

La lumière émise par des atomes excités d'hélium ou de néon dans la source des

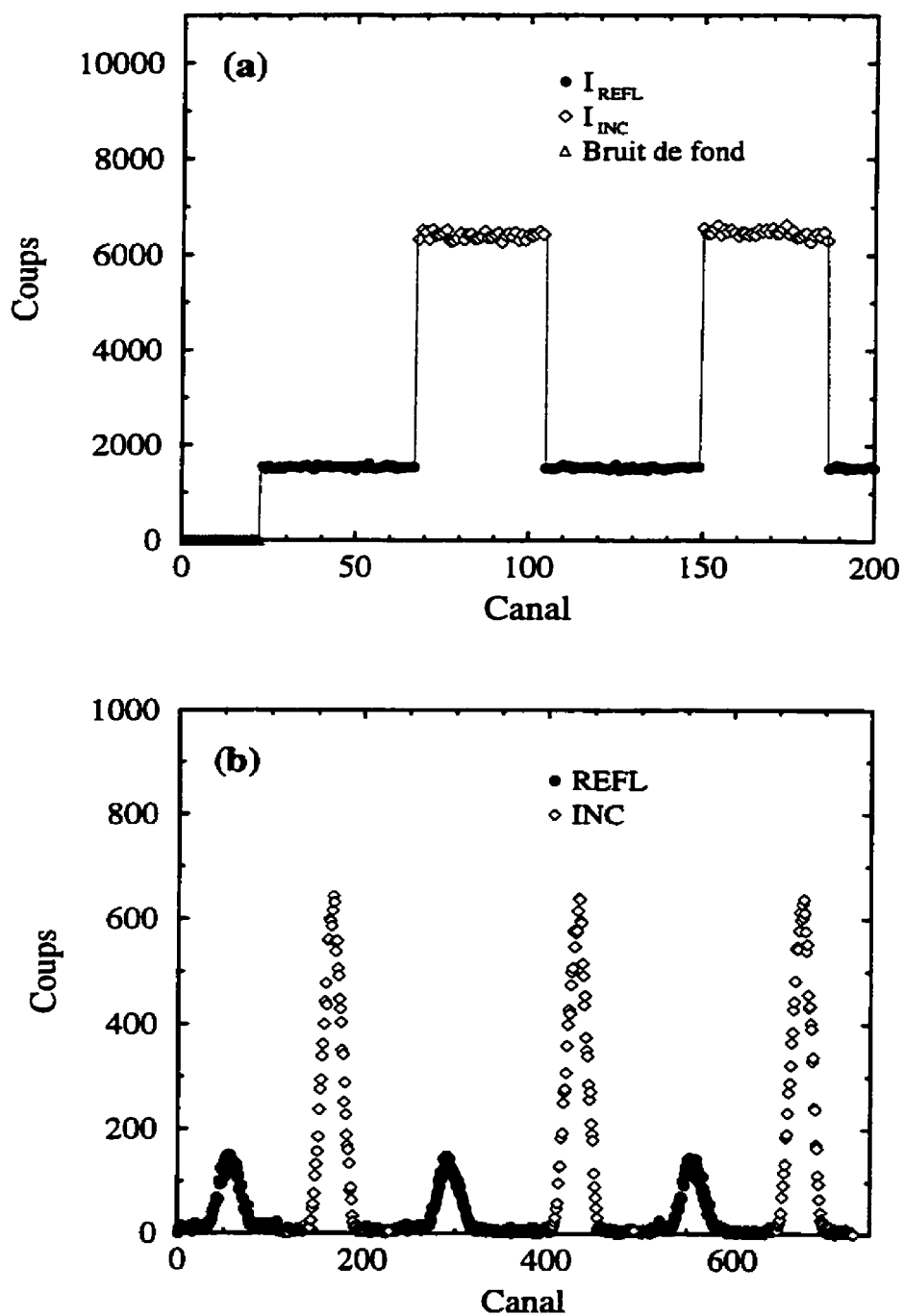


Figure 3.6: Spectres typiques des mesures de réflectivité: (a) le monochromateur est fixé sur la ligne désirée et (b) le monochromateur balaye la ligne d'intérêt.

rayons X mous (1) est dispersée par ce monochromateur et passe dans la chambre (3) de mesure de réflectivité. Comme détecteur (5), on utilise le CEM (*Channel Electro Multiplier*, ChanneltronTM). Tout le système est sous vide. La pression de base est de 10^{-6} Torr. L'appareil permet de faire deux types de mesures:

1. Le monochromateur est fixé sur la ligne de rayonnement désirée. Dès lors, les mesures de réflectivité sont effectuées en mesurant alternativement l'intensité de la lumière réfléchie I_{REFL} et de la lumière incidente I_{INC} (figure 3.6 (a)). La valeur de la réflectivité est donc $R = I_{REFL}/I_{INC}$.

2. Le monochromateur balaye la ligne d'intérêt. Les mesures de réflectivité sont identiques, à l'exception que les réflectivités sont calculées en mesurant les surfaces des pics de la lumière réfléchie et de la lumière incidente qui sont enregistrées pendant le processus de balayage (figure 3.6 (b)).

3.2.2 Description du système à vide du monochromateur

Le schéma principal de l'appareillage avec ses composantes du vide est présenté à la figure 3.7. L'appareil consiste en trois chambres qui peuvent être isolées les unes des autres à l'aide des vannes d'isolation (5). La chambre (1) est la chambre principale où se situe le réseau de diffraction; la chambre (2) est réservée pour la source du rayonnement et la chambre (3) est celle où sont placés le miroir et le détecteur pour les mesures de réflectivité.

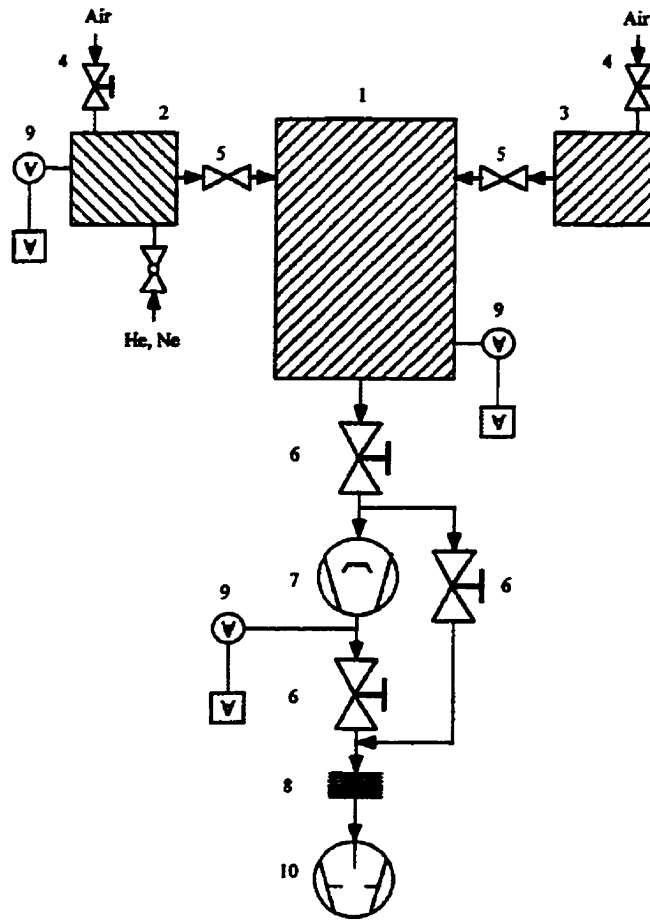


Figure 3.7: Schéma principal de l'appareil pour les mesures de réflectivité: (1) chambre principale, (2) et (3) chambres respectivement pour la source et pour les mesures de réflectivité, (4) vannes manuelles d'admission d'air ou de gaz, (5) et (6) vannes manuelles d'isolement, (7) pompe à diffusion avec le piège réfrigéré, (8) tube flexible, (9) appareils de mesures de vide et (10) pompe mécanique.

Les exigences concernant le niveau de vide ne sont pas très sévères mais sont néanmoins importantes, étant donné que le détecteur que l'on utilise ne peut pas fonctionner dans un vide moins poussé que $\sim 10^{-4}$ Torr. Le pompage du vide dans ce système dont le volume total est d'environ 0.020 m^3 , est effectué grâce à une pompe mécanique (10) et à une pompe à diffusion (7). La pompe mécanique et la pompe à diffusion sont connectées entre elles par un tube flexible (9). La pompe à diffusion est connectée directement à la chambre principale (1). Comme pompe à diffusion, on utilise la pompe TM VACUUM PRODUCTS 4" dont le débit de pompage est de $2700 \text{ m}^3/\text{h}$ (750 l/s). Le piège réfrigéré alimenté à l'azote liquide est utilisé pour éliminer la retrodiffusion de fluide (utilisé par la pompe) dans le récipient. La pompe mécanique est la pompe rotative à palettes de LEYBOLD-HERAEUS avec un débit de $14.6 \text{ m}^3/\text{s}$ (52.6 l/s).

3.2.3 Source du rayonnement

À la figure 3.8, nous présentons le schéma de la source du rayonnement des rayons X mous. La source est essentiellement constituée d'un canon à électrons. Les composantes de ce canon - l'anode (2), le cathode (1) et le filament de tungstène (W) (3) - sont placées dans une chambre qui est directement connectée au monochromateur. Le robinet (5) et l'appareil de contrôle de pression (6) permettent de contrôler la pression du gaz. Les gaz utilisés sont l'hélium (He) ou le néon (Ne). Les pressions typiques de travail sont d'environ $5 \cdot 10^{-3}$ Torr. Notons que lorsque la source est en fonction, la pression dans la

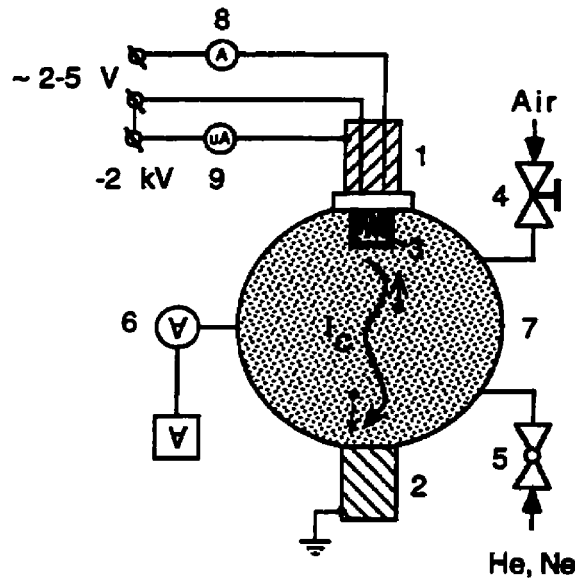


Figure 3.8: Schéma principal de la source du rayonnement: (1) cathode, (2) anode, (3) filament de tungstène (W), (4) vanne d'admission d'air, (5) vanne d'admission de gaz, (6) appareil de mesure de vide, (7) chambre de la source et (8) et (9) appareils de mesures des courants.

chambre principale du monochromateur (voir figure 3.7 (1)) ne monte pas plus haut que 10^{-4} Torr, en raison de la résistance à l'écoulement dans les vannes de connexion entre les chambres de l'appareil. Le courant typique du filament mesuré par (8) est de 4A. Le courant typique de décharge mesuré par (9) est de $500\mu\text{A}$.

La figure 3.9 présente les spectres du rayonnement produit par cette source et par la suite dispersé par le monochromateur. Les gaz utilisés étant l'hélium (He) et le néon (Ne).

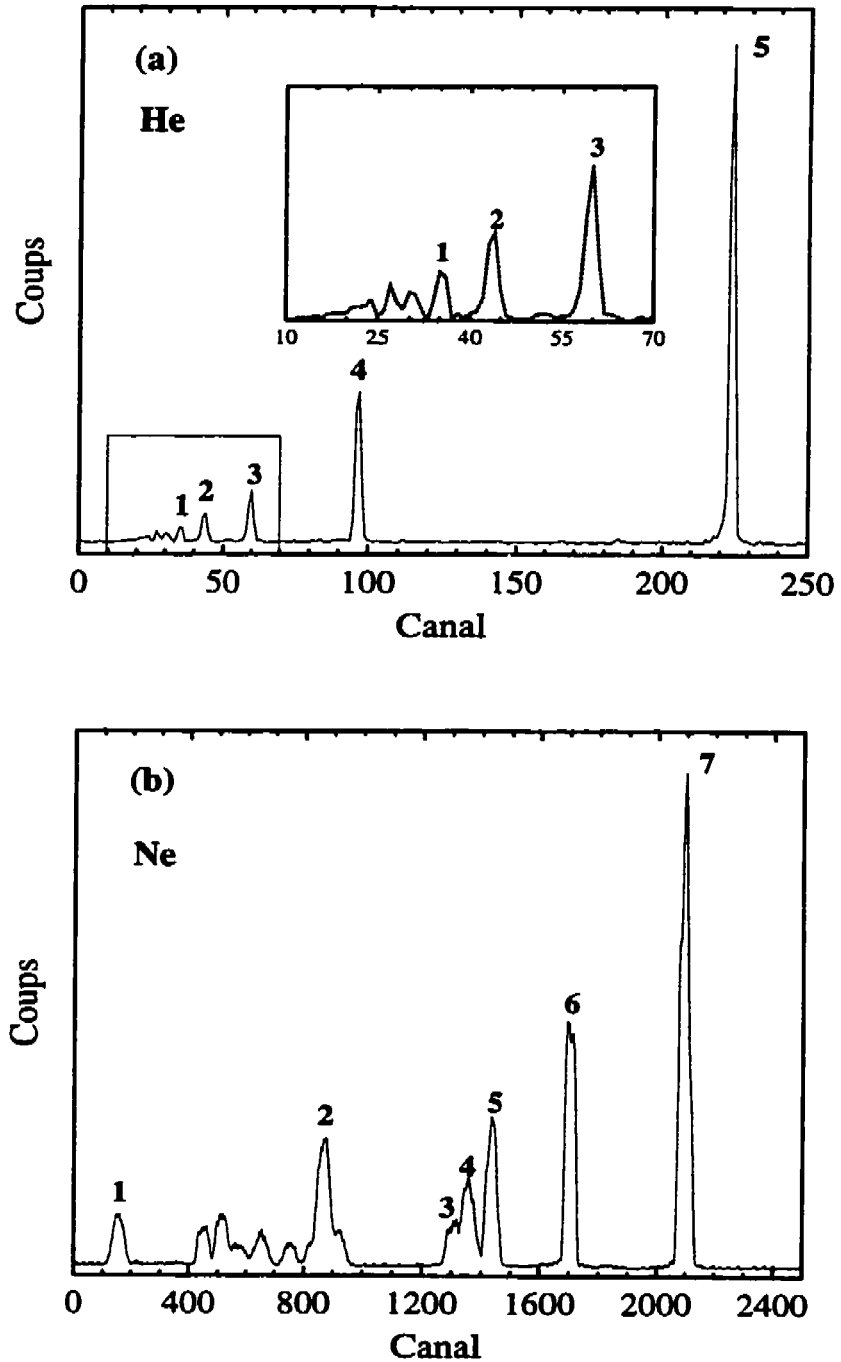


Figure 3.9: Spectres du rayonnement produit par la source et dispersé par le monochromateur: (a) spectre d'helium et (b) spectre du néon.

Tableau 3.1: Identification des lignes importantes. *Lignes utilisées.

Gaz	Numero de ligne	Longueur d'onde, λ [nm]	Configuration	Potentiel d'ionisation, E [eV]
He	1 He II	23.4	$1s - 6p$	54.416
	2 He II	23.7	$1s - 5p$	
	3 He II	24.3	$1s - 4p$	
	4* He II	25.6	$1s - 3p$	
	5* He II	30.4	$1s - 2p$	
Ne	1* Ne III	28.3	$2s^2 2p^4 - 2s^2 2p^3 3s$	63.74
	2* Ne II	32.7	$2s^2 2p^5 - 2s^2 2p^4 4d$	40.962
	3* Ne II	35.3	$2s^2 2p^5 - 2s^2 2p^4 4s$	
	4* Ne II	35.6	$2s^2 2p^5 - 2s^2 2p^4 3d$	
	5* Ne II	36.1	$2s^2 2p^5 - 2s^2 2p^4 3s$	63.74
	6* Ne II	37.9	$2s^2 2p^4 - 2s^2 p^5$	
	7* Ne II	40.6	$2s^2 2p^5 - 2s^2 p^4 3s$	

Les spectres ont été enregistrés en mode de balayage du monochromateur. Au tableau 3.1, nous présentons l'identification des lignes importantes. Des lors nous pouvons remarquer que le monochromateur permet d'obtenir une très grande résolution (voir le spectre de l'hélium). Bien que pour notre étude, nous ayons utilisé les lignes dans la région spectrale 25-40 nm, l'appareil peut être utile pour l'analyse même à des longueurs d'onde plus courtes (par exemple, 23.7 nm (He II), ou 24.3 nm (He II)).

Pour les mesures de réflectivité nous avons été les premiers à utiliser ce type de source

de rayonnement. Cette source de rayonnement a l'avantage d'être peu coûteuse et très facile à utiliser. Cependant, le système permet seulement de mesurer la réflectivité d'un miroir pour les longueurs d'ondes choisies (les spectres du rayonnement produits par cette source ne sont pas continues). Il est possible d'utiliser différents gaz ou un mélange de ces gaz pour pouvoir se déplacer dans l'échelle des longueurs d'ondes. Les mesures de la résolution des miroirs ($\lambda/\Delta\lambda$) ne peuvent toutefois pas être effectuées.

En ce qui concerne les mesures de réflectivité des miroirs multicouches, nous avons utilisé les lignes suivantes : 25.6 nm (He II), 28.3 nm (Ne III), 30.4 nm (He II), 32.7 nm (Ne II), 36.1 nm (Ne II), 37.9 nm (Ne III), 40.6 nm (Ne II). Pour les mesures de réflectivité des miroirs constitués d'une couche simple de platine (Pt) nous avons utilisé les lignes suivantes : 32.7 nm (Ne II), 35.6 nm (Ne II), 36.1 nm (Ne II), 37.9 nm (Ne III), 40.6 nm (Ne II).

3.2.4 Système de comptage pour les mesures de réflectivité

Le système de comptage pour les mesures de réflectivité est présenté à la figure 3.10. Comme détecteur, on utilise le CEM (*Channel Electron Multiplier*, Channeltron™) (1). Le signal du détecteur amplifié dans un préamplificateur (2), passe dans un inverseur (3) et est par la suite enregistré par un ordinateur (5). On utilise dans la plupart des cas un compteur (4) qui permet d'évaluer rapidement le taux de comptage et donc la réflectivité approximative du miroir.

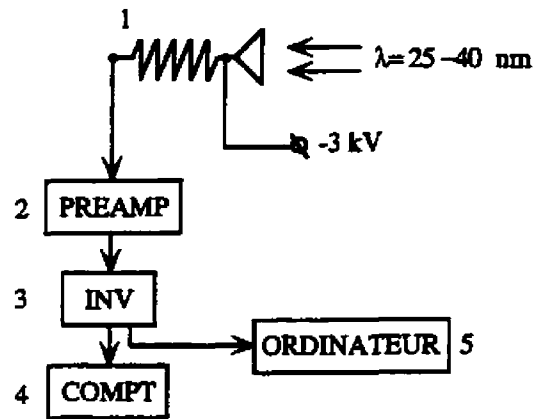


Figure 3.10: Système de comptage: (1) ChanneltronTM, (2) préamplificateur, (3) inverseur, (4) compteur et (5) ordinateur.

3.2.5 Design des miroirs

Comme nous l'avons dit auparavant, nous avons choisi sept longueurs d'ondes dans la région spectrale 25-40 nm pour effectuer les mesures de réflectivité des miroirs multicouches C/Si. Pour le design, nous avons utilisé le logiciel OMREFL1 (voir Appendice 1) qui calcule les épaisseurs des couches du miroir avec lesquelles la réflectivité du miroir serait théoriquement la plus grande. Les calculs ont été faits pour une incidence normale et en utilisant les constantes optiques calculées à partir des facteurs de diffusion atomique donnés par Henke *et al* [6-8]. Tous les résultats des calculs sont présentés au tableau 3.2

Nous avons également réalisé le design des miroirs en utilisant les constantes optiques données par Windt [9-11]. Les résultats obtenus en utilisant les mêmes calculs sont

Tableau 3.2: Design des miroirs multicouches C/Si en utilisant les constantes optiques calculées à partir des facteurs de diffusion donnés par Henke.

Longueur d'onde λ [nm]	Nombre de périodes	Épaisseurs des couches, d_C/d_{Si} [nm]	Réflectivité calculée, [%] (incidence normale)
25.6	25	4.7/9.0	31.8
28.3	25	5.1/10.3	31.1
30.4	30	5.3/11.4	30.2
32.7	26	5.7/12.6	29.1
36.1	28	6.3/14.4	28.5
37.9	25	6.6/15.5	28.2
40.6	16	7.2/17.1	27.6

présentés au tableau 3.3.

En comparant les résultats, nous voyons que la réflectivité calculée à l'aide des constantes de Windt est beaucoup plus faible que celle prévue en utilisant les constantes optiques calculées à partir des facteurs de diffusion donnés par Henke. Ceci est dû à la plus grande absorption présente dans les constantes de Windt et au contraste inférieur entre ses indices de réfraction et d'absorption. Pour le design final, nous avons choisi les constantes optiques calculées à partir des facteurs de diffusion donnés par Henke. Nous avons préféré utiliser ce design puisque les résultats initiaux ont montré que les valeurs de réflectivité obtenues expérimentalement ont déjà été plus grandes que celles prévues théoriquement à l'aide des constantes de Windt. De plus, quelques travaux suggèrent

Tableau 3.3: Design des miroirs multicouches C/Si en utilisant les constantes optiques données par Windt.

Longueur d'onde λ [nm]	Nombre de périodes	Épaisseurs des couches, d_C/d_{Si} [nm]	Réflectivité calculée, [%] (incidence normale)
25.6	25	5.2/8.5	21.5
28.3	25	5.6/9.9	20.9
30.4	30	6.2/10.6	17.5
32.7	26	7.9/10.9	12.8
37.9	25	9.7/12.9	12.5
40.6	16	10.4/14.4	14.4

que les facteurs de diffusion atomiques donnés par Henke constituent encore une bonne approximation même pour les longueurs d'ondes aussi grandes que 40 nm.

3.2.6 Résultats expérimentaux de mesures de réflectivité

Au tableau 3.4, nous présentons les résultats expérimentaux de mesures de la réflectivité des miroirs C/Si, dans la région spectrale 25-40 nm. La réflectivité a été mesurée à incidence "quasi normale", c'est-à-dire à quelques degrés hors de la normale. Notons toutefois que la réflectivité expérimentale de certains miroirs est présentée pour des angles assez grands (12 degrés), ce qui en fait n'est plus l'essence de l'incidence "quasi normale". Les maxima de réflectivité de ces miroirs ont été trouvés aux angles autres que ceux de

Tableau 3.4: Résultats expérimentaux des mesures de réflectivité.

Miroir	Longueur d'onde λ [nm]	Nombre de périodes	R_{exp} , [%] ($\pm 1\%$)	α_{inc}^{exp} , [deg]	$R_{Theorie}^{\alpha_{inc}=0}$ [%]	$R_{Theorie}^{\alpha_{inc}=\alpha_{exp}}$ [%]
0007	25.6	25	23	10	31.8	32.0
0001	28.3	25	20	12	31.0	31.3
0016	30.4	30	25	4	30.2	30.3
0018	32.7	26	24	6	29.1	29.3
0019	36.1	28	23	4	28.5	28.6
0020	37.9	25	22	5	28.2	28.2
0021	40.6	16	23	6	27.6	27.6

l'incidence "quasi normale" à cause de l'imprécision expérimentale. Cette imprécision est due au contrôle insuffisant des épaisseurs des couches pendant la fabrication des miroirs.

Au tableau 3.4, nous présentons également les résultats provenant des calculs théoriques. Afin de mieux comparer les résultats, les calculs théoriques ont été effectués pour des angles d'incidence identiques à ceux des mesures expérimentales (voir les deux dernières colonnes du tableau 3.4).

Bien que les valeurs de réflectivité obtenues expérimentalement correspondent bien à celles des calculs théoriques, un petit désaccord est présent. Plusieurs effets peuvent contribuer à ce désaccord. Premièrement les couches fabriquées n'ont pas les épaisseurs prévues. Deuxièmement il faut tenir compte de l'imprécision des constantes optiques,

de la rugosité des interfaces C-Si et Si-C (ces interfaces ne sont pas symétriques - voir Chapitre 4) et de la fluctuation aléatoire des épaisseurs de couches (si elle est présente). Normalement, tous ces effets peuvent être inclus dans les calculs. Cependant l'utilisation d'un grand nombre de paramètres donnera trop de degrés de liberté. Pour ces raisons nous avons négligé cette procédure puisqu'elle n'apporterait pas d'information complémentaire.

La plus grande réflectivité, $\sim 25\%$, a été obtenue pour la longueur d'onde 30.4 nm. Bien que nous ayons obtenu des valeurs inférieures pour les longueurs d'onde 25.6 nm (23%), 28.3 nm (20%), et 32.7 nm (24%), nous pensons qu'une réflectivité avoisinant $\sim 25\%$ peut être obtenue dans toute la région spectrale 25-33 nm. Les valeurs sont moins grandes à cause d'un contrôle insuffisant du processus de fabrication des miroirs.

Analogiquement, une réflectivité de $\sim 23\%$ peut être prévue dans la région spectrale 33-40 nm. Notons que les désaccords entre la théorie et la pratique sont moins grands dans cette région spectrale. Les erreurs d'épaisseur des couches deviennent de moins en moins importantes pour la réflectivité des miroirs, lorsque la longueur d'onde augmente.

3.2.7 Étude de la saturation de réflectivité

À cause de l'absorption des matériaux, il existe un nombre optimal de couches au-delà duquel la réflectivité n'augmente pas. Comme nous l'avons expliqué au Chapitre 2, la réflectivité du miroir sature après un certain nombre de périodes et n'augmente plus lorsqu'on ajoute des couches additionnelles. Nous avons fabriqué plusieurs miroirs multi-

couches ayant divers nombres de couches (jusqu'à 50 périodes). Cependant, nous n'avons pas remarqué d'augmentation de la réflectivité pour les miroirs ayant plus de 25 périodes. Notons toutefois, que le nombre de périodes nécessaires pour que la réflectivité soit la plus élevée possible dépend de la longueur d'onde. Plus les longueurs d'ondes sont longues, moins grand sera le nombre de périodes exigé. En effet, étant donné que l'absorption des matériaux devient de plus en plus élevée lorsque la longueur d'onde augmente, moins d'interfaces vont effectivement contribuer à la réflectivité.

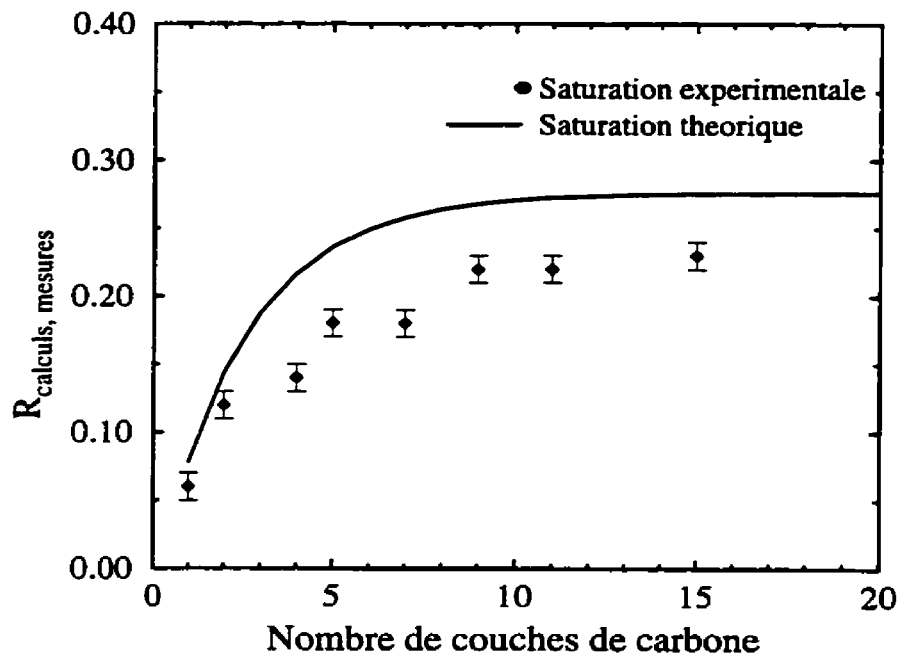


Figure 3.11: Influence du nombre de couches sur la réflectivité de miroirs multicouches C/Si.

Nous avons étudié l'influence du nombre des couches sur la réflectivité de nos miroirs multicouches C/Si. Nous avons commencé par la fabrication des miroirs constitués d'une

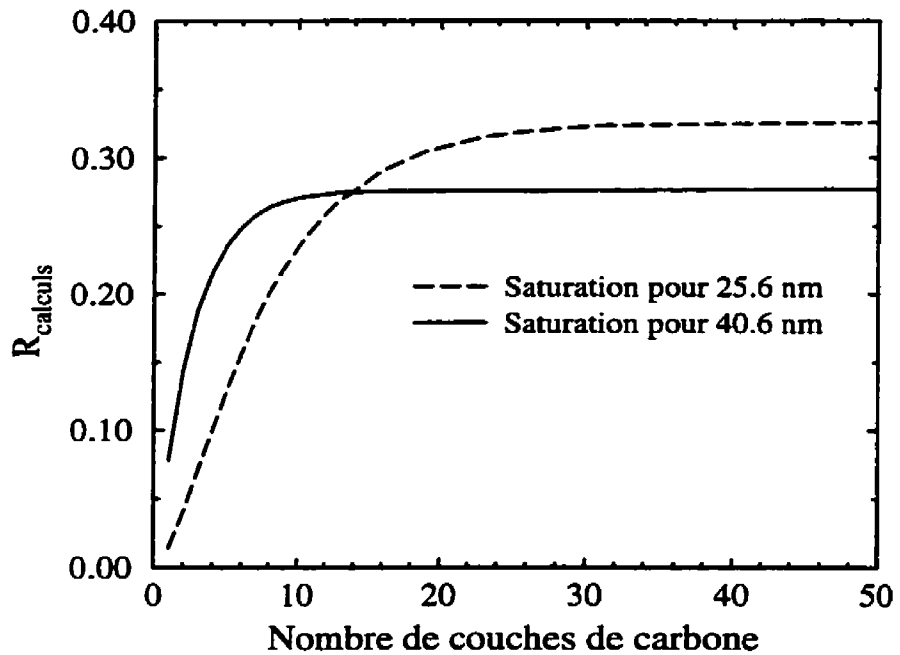


Figure 3.12: Comparaison de la saturation de réflectivité pour deux longueurs d'ondes.

seule couche de carbone et avons graduellement augmenté le nombre des couches jusqu'à ce que la réflectivité ne change plus. Nous avons par la suite comparé ces résultats avec les résultats des calculs théoriques. Pour cette étude, nous avons choisi le rayonnement de la longueur d'onde 40.6 nm.

Les résultats de la réflectivité théorique et expérimentale sont présentés à la figure 3.11. Nous observons un bon accord entre les résultats théoriques et expérimentaux. Les calculs montrent que la réflectivité théorique sature déjà à 10 périodes. Nous obtenons des résultats similaires expérimentalement. En ajoutant des couches additionnelles, la

réflectivité n'augmente plus. Un petit désaccord entre les valeurs théorique et expérimentale de la réflectivité peut être expliqué à l'aide des considérations mentionnées auparavant (rugosité des interfaces, interdiffusion, contrôle insuffisant du processus de la fabrication, etc.).

Des résultats semblables peuvent être prévus pour les longueurs d'ondes plus courtes (voir figure 3.12), à l'exception que dans ces cas, la saturation de la réflectivité interviendra pour un nombre de périodes plus élevée, l'absorption des matériaux étant plus faible.

3.2.8 Comparaison de la réflectivité des miroirs C/Si et des miroirs constitués d'une couche unique de platine (Pt)

Nous avons présenté les résultats des mesures de réflectivité des miroirs constitués d'une seule couche de platine (Pt) au Chapitre 2. Notons encore une fois que le platine est considéré comme un des matériaux les plus réfléchissants dans la région spectrale 25-40 nm, plus particulièrement dans la région située entre 25 et 35 nm. Par conséquent il est logique de comparer ces résultats à ceux de la réflectivité obtenus avec les miroirs C/Si. À la figure 3.13, nous présentons tous les résultats expérimentaux obtenus pour les miroirs constitués d'une couche simple de platine (Pt) et pour les miroirs multicouches C/Si, ainsi que la courbe de réflectivité théorique pour les miroirs C/Si. Nous pouvons remarquer que dans la région spectrale 25-30 nm, les miroirs C/Si possèdent une réflectivité plus grande au moins d'un facteur 10 que celle des miroirs de platine. Ce facteur diminue

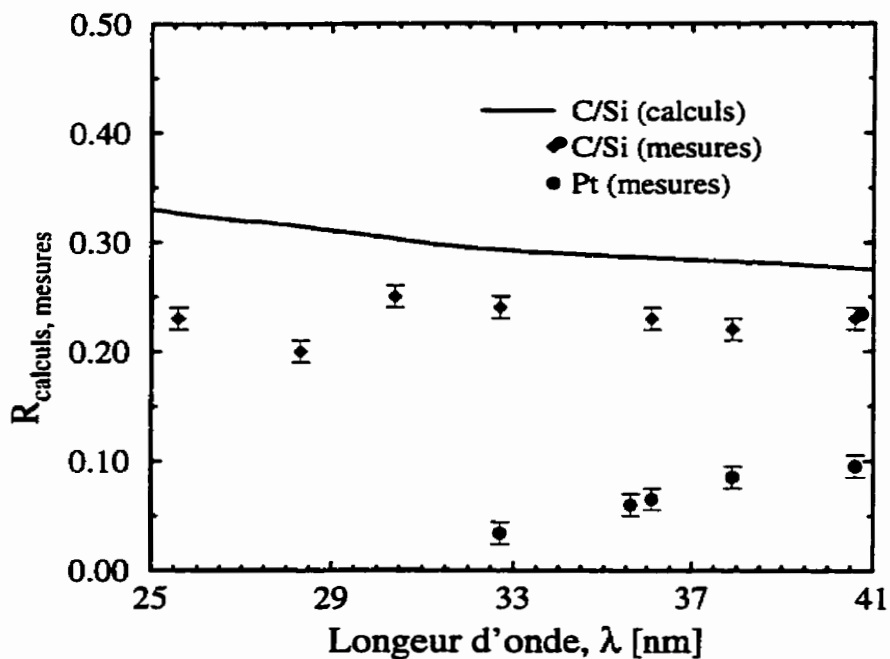


Figure 3.13: Comparaison de réflectivité des miroirs C/Si et des miroirs constitués d'une couche unique de platine (Pt).

dans la région 30-40 nm. Toutefois sa valeur reste assez élevée pour qu'on puisse toujours considérer l'utilisation des miroirs C/Si comme plus avantageuse que l'utilisation de miroirs basés sur des matériaux élémentaires.

Dans cette région spectrale, les valeurs de réflectivité sont les plus grandes obtenues à ce jour.

3.3 Mesures de la réflectivité des miroirs C/Si à incidence rasante (LAXRD)

Les résultats de réflectivité obtenus avec les miroirs multicouches C/Si indiquent que les structures fabriquées ont une très bonne qualité. Cette conclusion peut premièrement être vérifiée par la technique des rayons X à incidence rasante. Cette méthode est très souvent utilisée pour la caractérisation de miroirs multicouches. Son application pour les miroirs C/Si est toutefois limitée. En effet, le contraste entre les indices optiques de ces deux matériaux pour la longueur d'onde 0.1542 nm n'est pas suffisamment grand comme, par exemple, dans le cas de multicouches grand Z / petit Z (Mo/Si, W/Si, etc.). Pour cette raison, l'étude à l'aide de cette technique devient compliquée. Dans le cas de C/Si il est donc nécessaire de déposer de grands nombres de couches pour que les multicouches soient convenables pour ce type d'expériences ce qui augmente la durée de fabrication du miroir. Dans nos conditions de dépôt, la fabrication du miroir ayant 50 périodes (100 couches) dure environ 12 heures. Il est difficile de maintenir pendant cette période de temps les conditions initiales de dépôt. Les fluctuations dans les paramètres de dépôt pendant la fabrication peuvent causer les variations aléatoires des épaisseurs de couches. La réflectivité sera donc influencée par cet effet ce qui va compliquer l'interprétation des résultats.

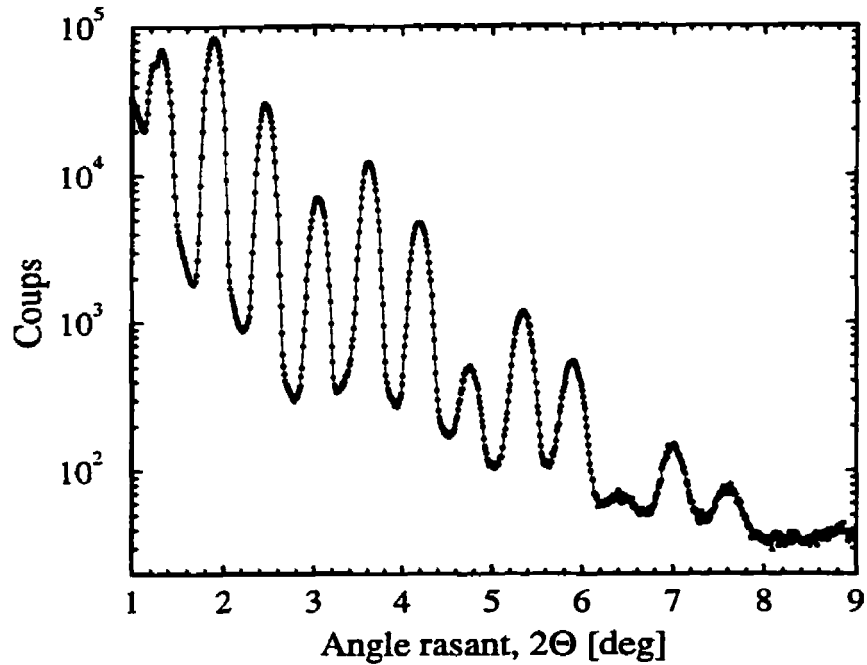


Figure 3.14: Réflectivité du miroir 0017 (C/Si, 50 périodes) à incidence rasante.

À la figure 3.14, nous présentons le spectre ($\theta - 2\theta$) enregistré pour le miroir C/Si (0017), ayant 50 périodes de couches. Le diffractomètre utilisé est le Rigaku Rotaflex (RU 200BH) ($\lambda=0.1542$ nm, $\text{CuK}\alpha$). Le nombre de pics de Bragg que l'on observe indique que les multicouches fabriquées ont une très bonne qualité, des couches étant planes et des interfaces abruptes.

Une bonne réflectivité des miroirs multicouches C/Si et surtout un très bon accord entre les résultats expérimentaux et théoriques nous ont suggéré que le carbone et le silicium sont des matériaux pour lesquels les couches formées ont probablement des inter-

faces très abruptes et planes. Les résultats initiaux obtenus à l'aide de la technique de rayons X à incidence rasante, ont également conduit à des conclusions semblables. Afin de confirmer ces conclusions entièrement, nous avons ensuite fait appel à la microscopie électronique à transmission. Cette méthode est peut-être la seule méthode fournissant des résultats d'analyse sans ambiguïté. Bien que la méthode soit complexe, principalement à cause des difficultés de la préparation des échantillons, les résultats obtenus sont indispensables. Les résultats de cette analyse sont présentés au chapitre suivant.

Bibliographie

- [1] voir, par exemple, M. Ohring, "The new materials Science of Thin Films", (Academic Press, New York 1992); "Thin Film Processes II", eds. J.L. Vossen et W. Kern, (Academic Press, New York 1991).
- [2] E. Spiller, *Appl. Phys. Lett.* **20**, 365 (1972).
- [3] M.B. Stearns, C-H. Chang et D. Stearns, *J. Appl. Phys* **71**, 187 (1992).
- [4] S. Ogura, M. Niibe, Y. Watanabe, M. Hayashida et T. Iizuka *SPIE Vol. 984*, "X-ray Multilayers for Diffractometers, Monochromators, and Spectrometers," 140 (1988).
- [5] J.M. Slaughter, D.W. Schulze, C.R. Hills, A. Mirone, R. Stalio, R.N. Watts, C. Tarrio, T.B. Lucatorro, M. Krumrey, P. Mueller et C.M. Falco, *J. Appl. Phys.* **76**, 2144 (1994).
- [6] B.L. Henke, P. Lee, T.J. Tanaka, R.L. Shimabukuro et B. K. Fujikawa, *At. Nucl. Data Tables* **27**, 1 (1982).
- [7] B.L. Henke, E.M. Gullikson et J.C. Davis, *At. Nucl. Data Tables* **54**, 181 (1993).

-
- [8] E.M. Gullikson, P. Denham, S. Mrowka et J.H. Underwood, *Phys. Rev. B* **49**, 16283 (1994).
- [9] D.L. Windt, W.C. Cash, M. Scott, P. Arendt, B. Newman, R.F. Fisher, A.B. Swartzleter, P.Z. Takacs et J.M. Pinneo, *Appl. Opt.* **27**, 246 (1988).
- [10] D.L. Windt, W.C. Cash, M. Scott, P. Arendt, B. Newman, R.F. Fisher et A.B. Swartzleter, *Appl. Opt.* **27**, 279 (1988).
- [11] D.L. Windt, *Appl. Opt.* **30**, 15 (1988).

Chapitre 4

Caractérisation des miroirs multicouches C/Si par microscopie électronique à transmission (TEM)

4.1 Considérations générales

Depuis longtemps les mesures de réflectivité des miroirs constituent les méthodes principales pour la caractérisation de la qualité des miroirs. En effet ces multicouches sont conçues pour cette application. Bien que cette méthode soit nécessaire, elle n'est pas toujours fiable. En effet, les mesures étant effectuées dans un volume macroscopique, il est nécessaire, afin d'interpréter correctement les résultats, d'inclure plusieurs paramètres dans le traitement analytique. Ces difficultés d'interprétation sont minimisées en analysant les multicouches au microscope électronique à transmission. Les images formées par le faisceau électronique rendent directement l'information, ce qui nous permet de connaître sans ambiguïté la qualité des structures. De plus, l'utilisation du microscope électronique

de haute résolution nous permet de mesurer quantitativement certaines données. Nous pouvons ainsi mesurer les épaisseurs des couches et la rugosité des interfaces. Notons que les autres caractéristiques des multicouches telles que la cristallinité des couches, leur périodicité et l'inter-diffusion peuvent aussi être déterminées [1].

Aux figures 4.1, 4.2, 4.3, nous présentons les photographies de deux multicouches Mo/Si¹ ont obtenues à l'aide du microscope électronique. Les figures 4.1 et 4.2 représentent la même multicouche avec des grossissements différents. Une très bonne qualité de structure est observée. Les couches sont planes et ont une faible rugosité d'interfaces. Une certaine inter-diffusion est toutefois présente. Notons que le grossissement à la figure 4.2 est de 1.93 million.

La figure 4.3 montre une structure aperiodique de Mo/Si. Les épaisseurs des couches ont été variées pendant la fabrication tout spécialement pour vérifier la reproductibilité du dépôt. Dans cette photographie nous pouvons même observer la cristallinité des couches du molybdène (Mo).

Ainsi, la microscopie électronique par transmission est un outil indispensable pour la caractérisation de miroirs multicouches. La quantité d'information obtenue au microscope électronique ne peut être fournie par aucune autre méthode de caractérisation. Néanmoins, son application est limitée en pratique par des difficultés de préparation des échantillons afin de pouvoir observer les multicouches en intersection.

¹ Les multicouches Mo/Si ont été fabriquées à l'aide du même système de fabrication.

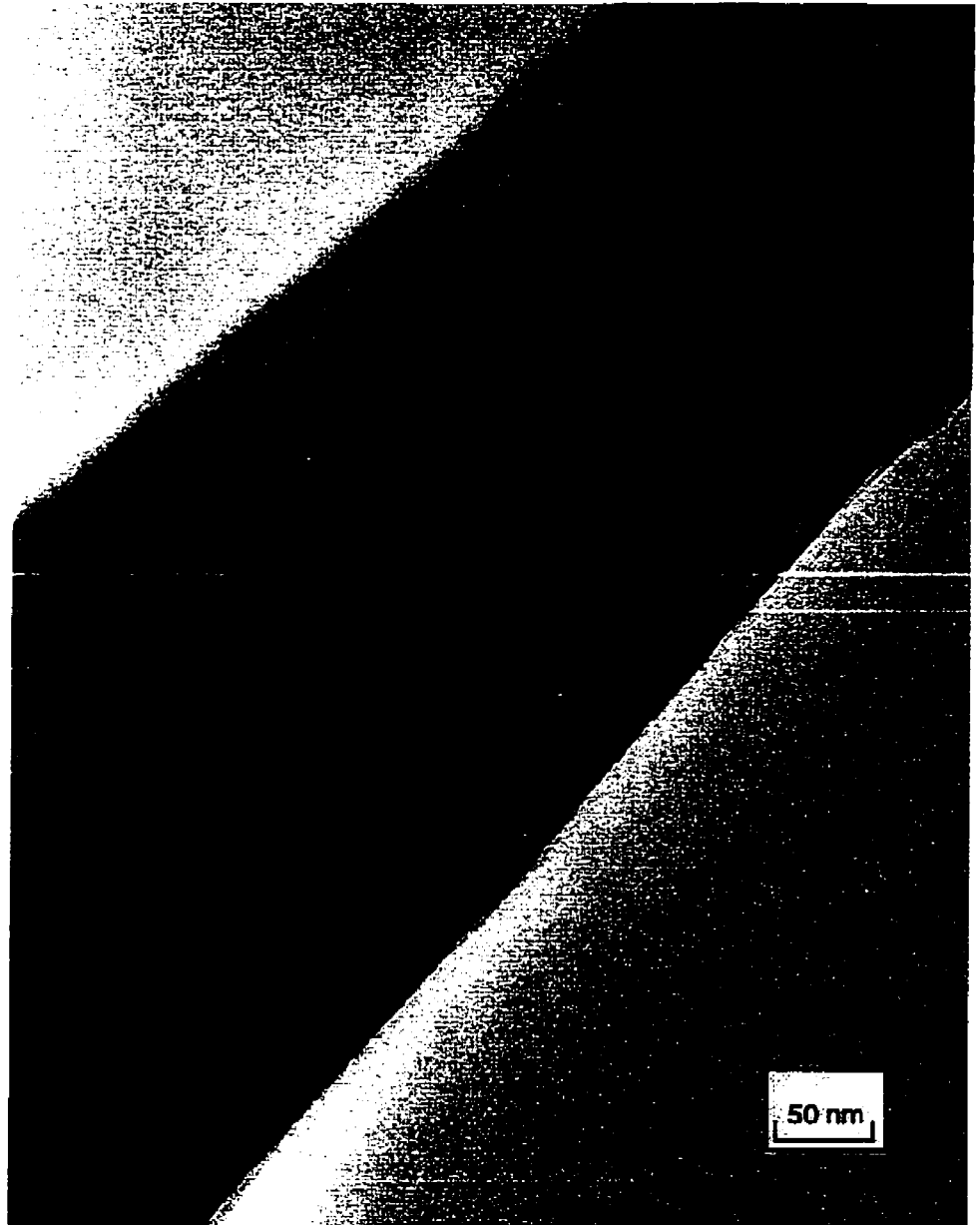


Figure 4.1: Miroir multicouche Mo/Si ($\sim 4/6$ nm, 13 périodes), grandissement de $3.7 \cdot 10^5$.

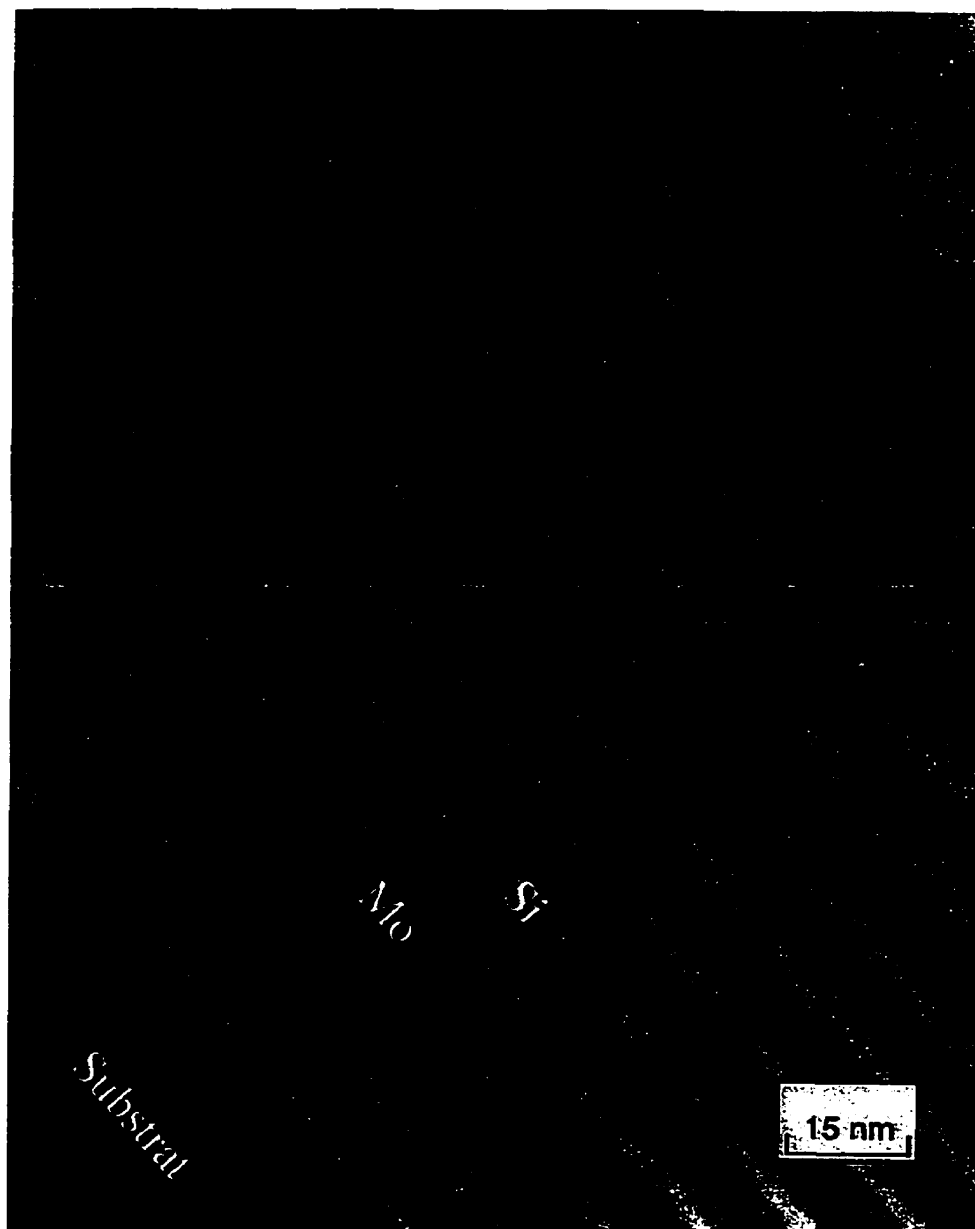


Figure 4.2: Miroir multicouche Mo/Si ($\sim 4/6$ nm, 13 périodes), grandissement de $1.9 \cdot 10^6$.

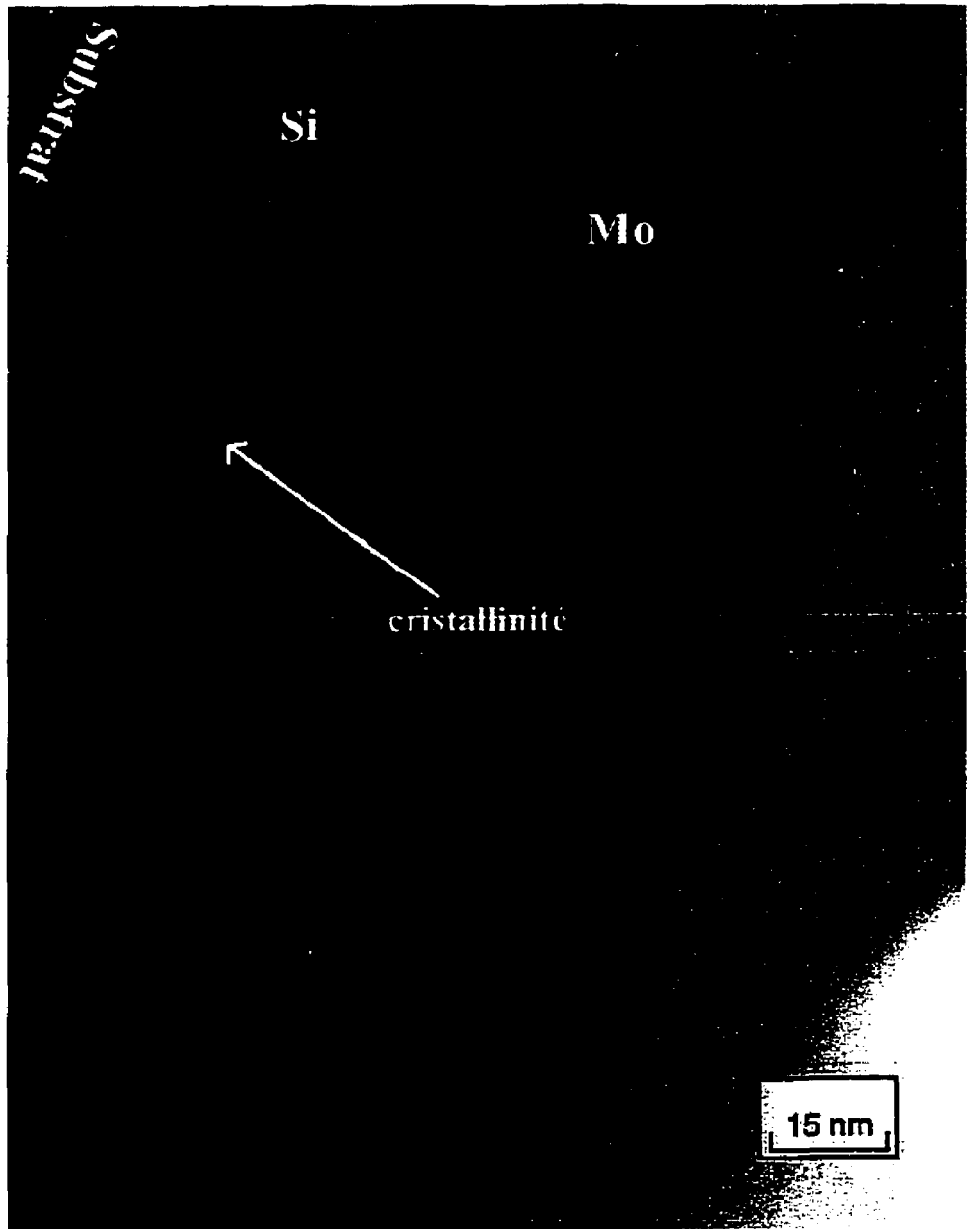


Figure 4.3: Miroir multicouche Mo/Si ($d_{Si}=6$ nm = const, $d_{Mo}=4, 6, 8, 10, 12, 4, 16$ nm), grandissement de $1.9 \cdot 10^6$.

Il existe plusieurs méthodes pour la préparation des échantillons pour la microscopie électronique par transmission (voir, par exemple [2]), mais seulement certaines d'entre elles ont été appliquées pour la caractérisation des miroirs multicouches pour les rayons X. Cette difficulté est due aux exigences particulières qui doivent être satisfaites pendant la préparation des échantillons. Premièrement, l'échantillon doit avoir une grande surface d'épaisseur constante, tout en étant transparent au faisceau électronique (quelques dizaines de nanomètres). De plus, le processus de préparation ne doit pas introduire d'amorphisation des matériaux dans l'échantillon. Il faut également éviter les processus de chauffage, puisque cela peut induire l'inter-diffusion des matériaux. Il est finalement souhaitable que la méthode de préparation soit rapide et peu coûteuse.

4.2 Méthodes de préparation des échantillons

La méthode proposée par Lepêtre [3,4] est la première à montrer que la microscopie électronique est utile pour la caractérisation des miroirs multicouches. Cette méthode, connue sous le nom de technique de micro-clivage (*micro-cleavage technique*), est appliquée de la façon suivante. De petits fragments de multicouches sont détachés et déposés sur la grille du microscope. Si l'orientation de leurs intersections est perpendiculaire au faisceau électronique et si leurs épaisseurs sont suffisamment minces, il est alors possible d'obtenir une image valable de la multicouche. Toutefois, cette méthode montre à peine les détails de la structure d'autant plus que le taux de réussite dépend plutôt du technicien que du

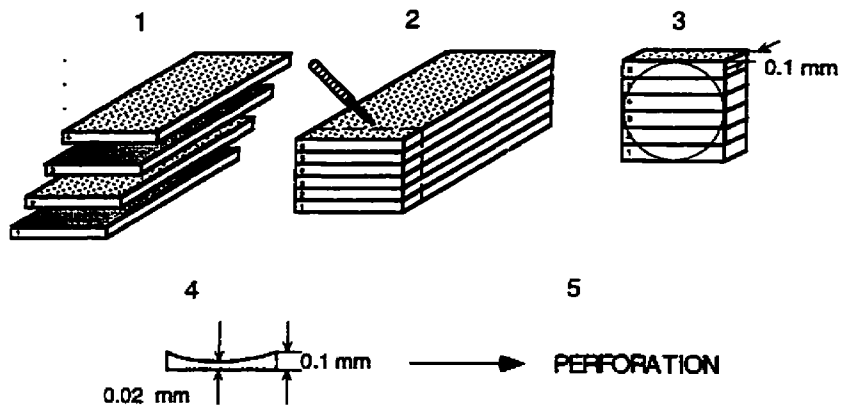


Figure 4.4: Méthode de Bravman et Sinclair: (1) les substrats sont collés ensemble, (2) (3) une petite partie du bloc est séparée et amincie, (4) la procédure de *dimpling* et (5) perforation finale.

la méthode elle-même. Malgré quelques modifications effectuées ultérieurement par les mêmes auteurs [5], la méthode n'est pas souvent utilisée.

Présentement, les méthodes les plus populaires pour la préparation des échantillons sont celles qui impliquent lors des dernières étapes de préparation, la perforation de l'échantillon par le faisceau ionique (*ion beam milling*). Les étapes initiales de toutes ces méthodes sont plus ou moins semblables. La plus connue est la procédure de Bravman et Sinclair [6] (voir la figure 4.4). Dans cette méthode, les substrats (habituellement des substrats de silicium Si (001) ou Si (111)) avec les multicouches déjà déposées sont initialement collés face à face (figure 4.4 (1),(2)). Une petite partie du bloc résultant est ensuite séparée et amincie jusqu'à une valeur de 0.1 mm en utilisant un matériau abrasif

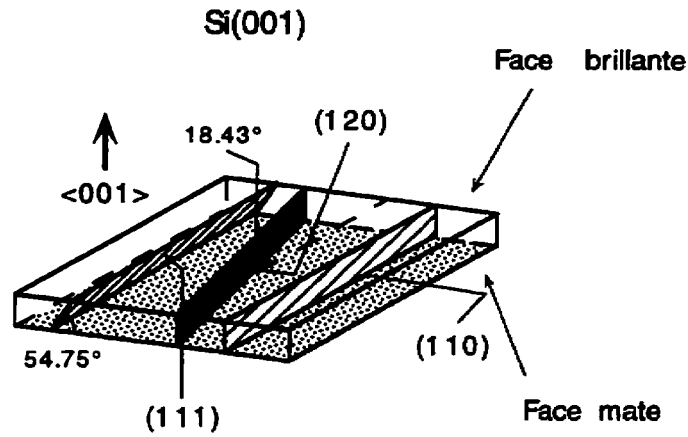


Figure 4.5: Substrat de Si(001), positionnement de divers plans.

(figure 4.4 (3)). À l'étape suivante, c'est l'utilisation de l'appareil de *dimpling* (dimpling machine (angl)) qui permet de diminuer encore l'épaisseur de l'échantillon, jusqu'à 0.02 mm (figure 4.4 (4)). Le dernier traitement à effectuer est la perforation de l'échantillon en utilisant la pulvérisation ionique (figure 4.4 (5)).

Cette méthode, malgré sa grande popularité, souffre de divers désavantages. Premièrement l'amorphisation de l'échantillon peut être induite pendant la pulvérisation ionique. Deuxièmement l'inter-diffusion des matériaux peut avoir lieu pendant la fabrication si le processus de chauffage est utilisé (souvent utilisé lors des étapes initiales de préparation). La description détaillée de cette méthode peut être trouvée dans [6].

Au cours des dernières années, une autre méthode de préparation a été développée. C'est la méthode proposée par McCaffrey connue sous le nom de *clivage aux petits angles*

(*small-angle cleavage technique*) [2,7,8]. Puisque des miroirs multicouches sont habituellement déposés sur des substrats de silicium (Si (001) ou Si (111)) il est possible de cliver ces substrats (avec les multicouches déposées) selon certains plans afin d'obtenir des régions transparentes au faisceau électronique. Pour le substrat de Si(001), ce sont les plans (120) et (110) qui font un angle de 18.43 deg (figure 4.5). Après le clivage selon ces plans, on obtient un triangle dont l'extrémité a une épaisseur appropriée pour l'analyse au microscope électronique (elle est transparente au faisceau électronique).

La procédure de préparation est illustrée à la figure 4.6. La méthode fournit des échantillons d'une qualité supérieure, libres des désavantages présents dans la méthode de Bravman et Sinclair (l'amorphisation et l'inter-diffusion). De plus, la procédure est très rapide. La surface transparente au faisceau ionique est toutefois un peu moins grande que dans les échantillons préparés en utilisant la méthode de Bravman et Sinclair. La description détaillée de cette méthode peut être trouvée dans [2,7,8].

4.3 Résultats et conclusions

C'est la méthode de *clivage aux petits angles* qui a été utilisée pour la préparation des échantillons des toutes les multicouches Mo/Si et C/Si présentées par les photographies de ce chapitre (figures 4.1 - 4.3, 4.7 - 4.15). Le microscope électronique utilisé est le Philips EM430T (250 kV). Les échantillons ont été préparés et observés au microscope

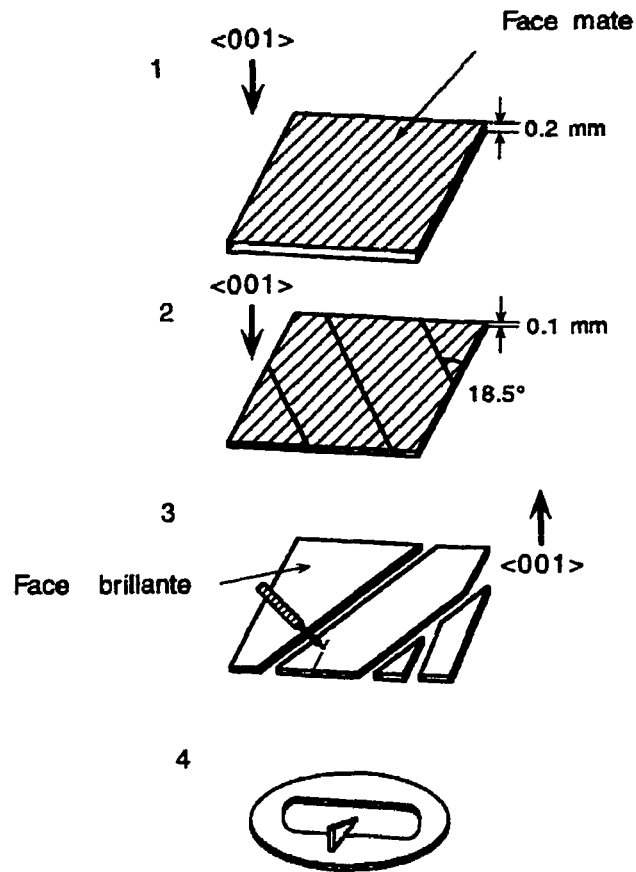


Figure 4.6: Méthode de *clivage aux petits angles*: (1),(2),(3) clivage d'échantillons selon les plans (120) et (110) et (4) observation au microscope.

électronique par J. McCaffrey du CNRC. Dans les pages qui suivent (figures 4.7 - 4.15) nous présenterons les photographies de divers miroirs multicouches C/Si. La qualité de multicouches fabriquées n'exige pas de commentaires. Les conclusions suivantes sont évidentes:

1. Les multicouches fabriquées sont périodiques.

2. Les interfaces des couches sont abruptes et planes. Une faible inter-diffusion ainsi que l'asymétrie des interfaces (C-Si et Si-C) ont toutefois été observées. L'asymétrie d'interfaces et le fait qu'une plus grande largeur d'interface Si-C (la couche de Si est déposée sur la couche de C) est plus grande que celle de C-Si peuvent être expliquées à l'aide de l'hypothèse balistique (voir par exemple [1]). Pendant le dépôt de la couche de silicium, les atomes de Si pénètrent plus profondément la couche de carbone, que font les atomes de C dans la couche de silicium, pendant le dépôt de la couche de carbone. En effet, la densité d'une couche de silicium est plus grande que celle d'une couche de carbone. D'autre part, puisque les atomes de carbone sont plus légers, ils ont des énergies cinétiques inférieures à celles des atomes de silicium.

3. La rugosité d'interfaces est basse (du même ordre que la rugosité du substrat).

4. Les couches de toutes les multicouches C/Si sont amorphes.

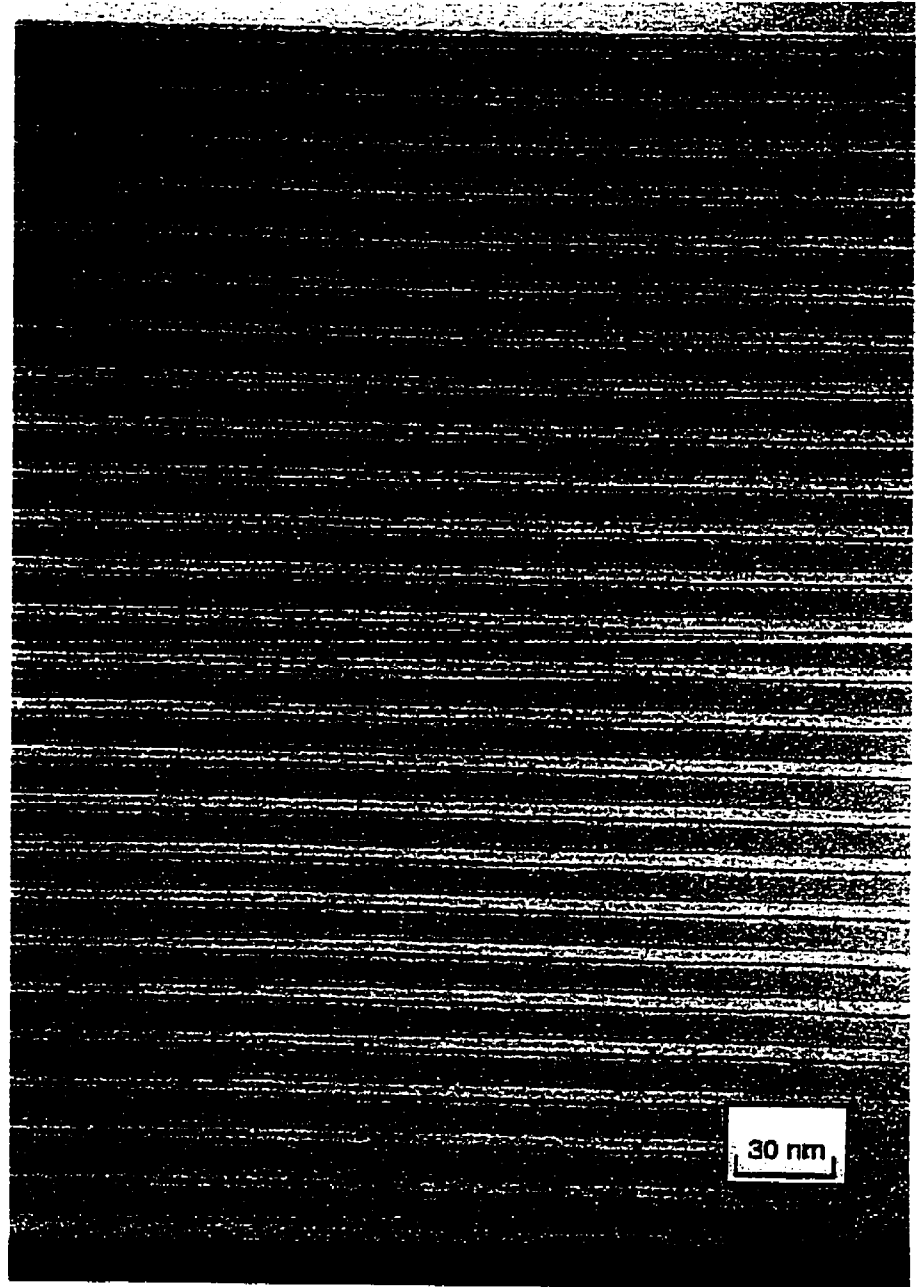


Figure 4.7: Miroir multicouche C/Si ($\sim 5/10$ nm, 25 périodes (0001)), grandissement de 800 000.

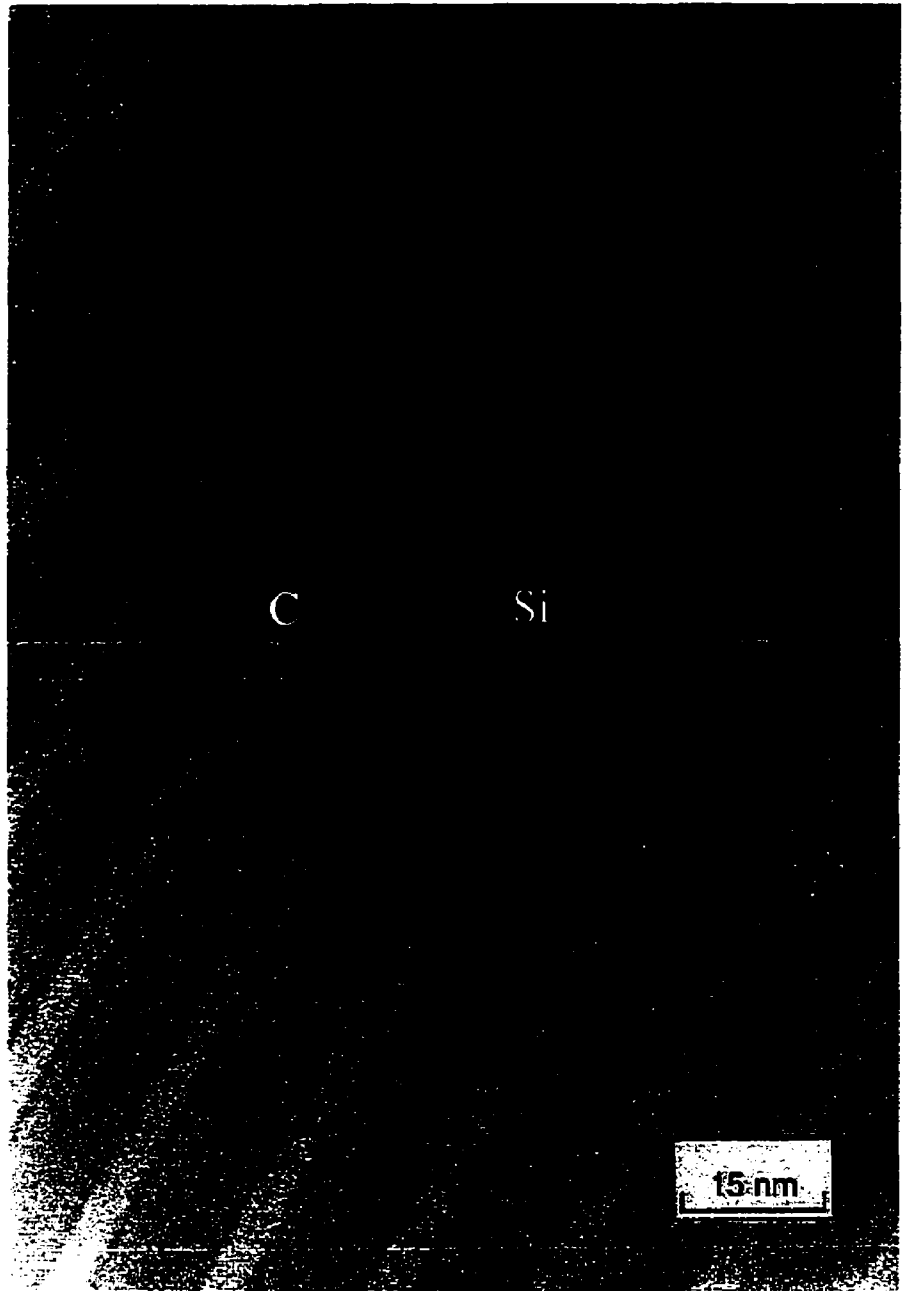


Figure 4.8: Miroir multicouche C/Si ($\sim 5/10$ nm, 25 périodes (0001)), grandissement de 65 000.

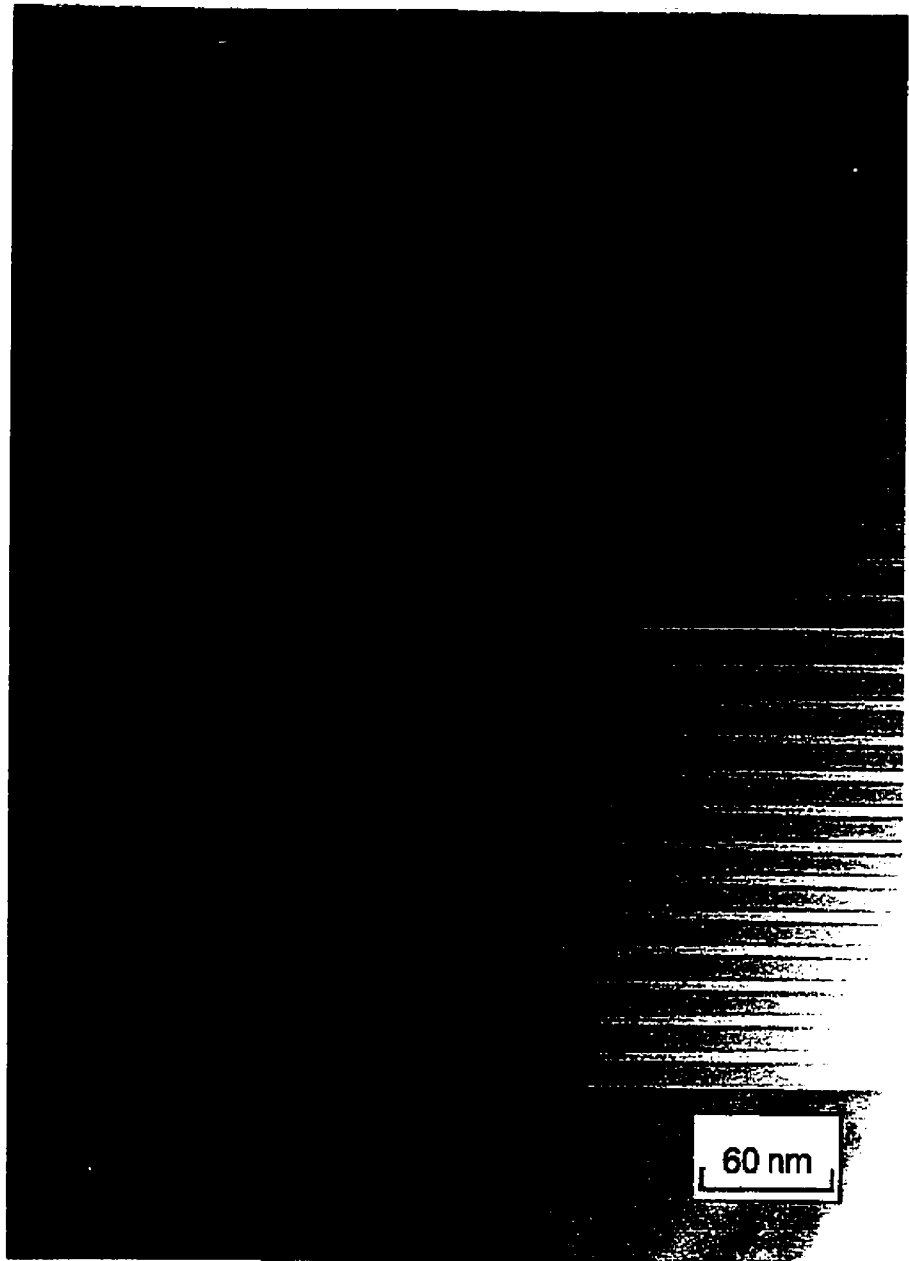


Figure 4.9: Miroir multicouche C/Si ($\sim 4.7/9$ nm, 25 périodes (0007)), grandissement de 7100.

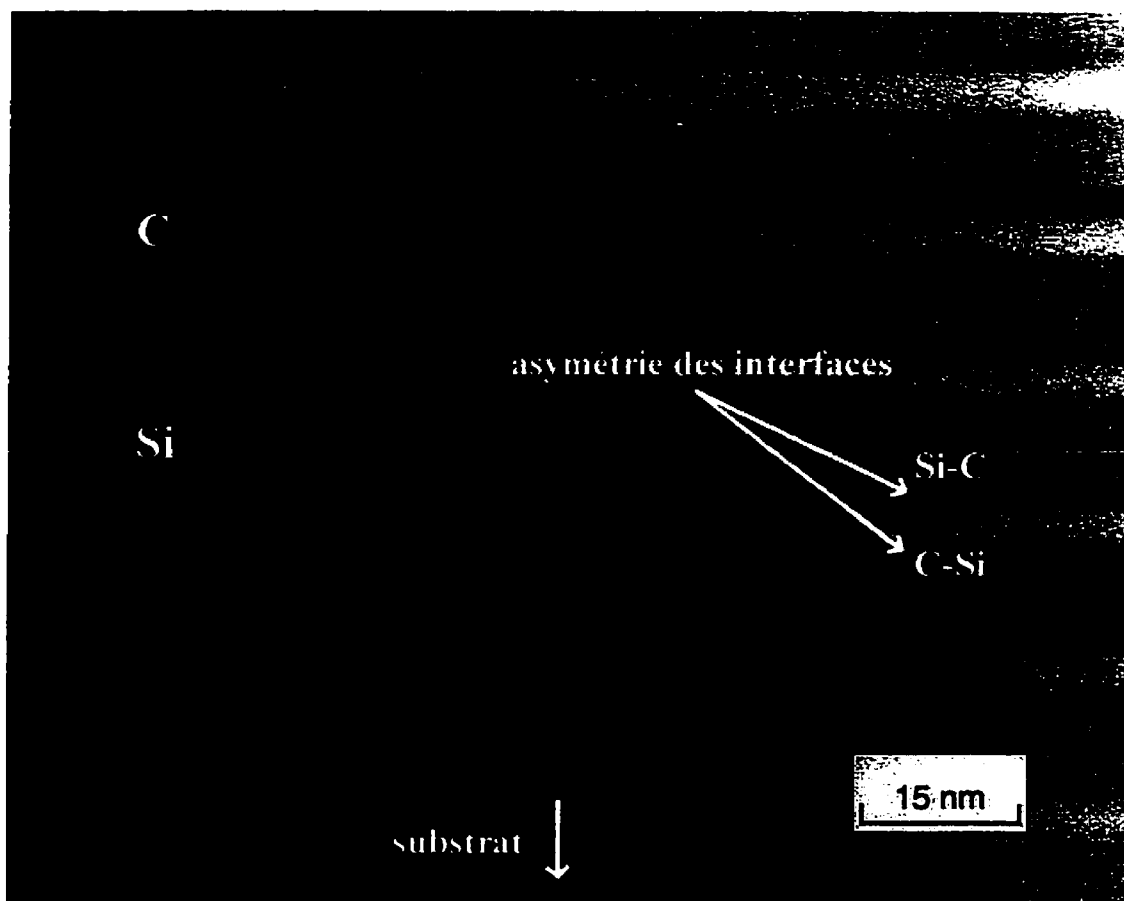


Figure 4.10: Miroir multicouche C/Si ($\sim 4.7/9$ nm, 25 périodes (0007)), grandissement de 665 000.

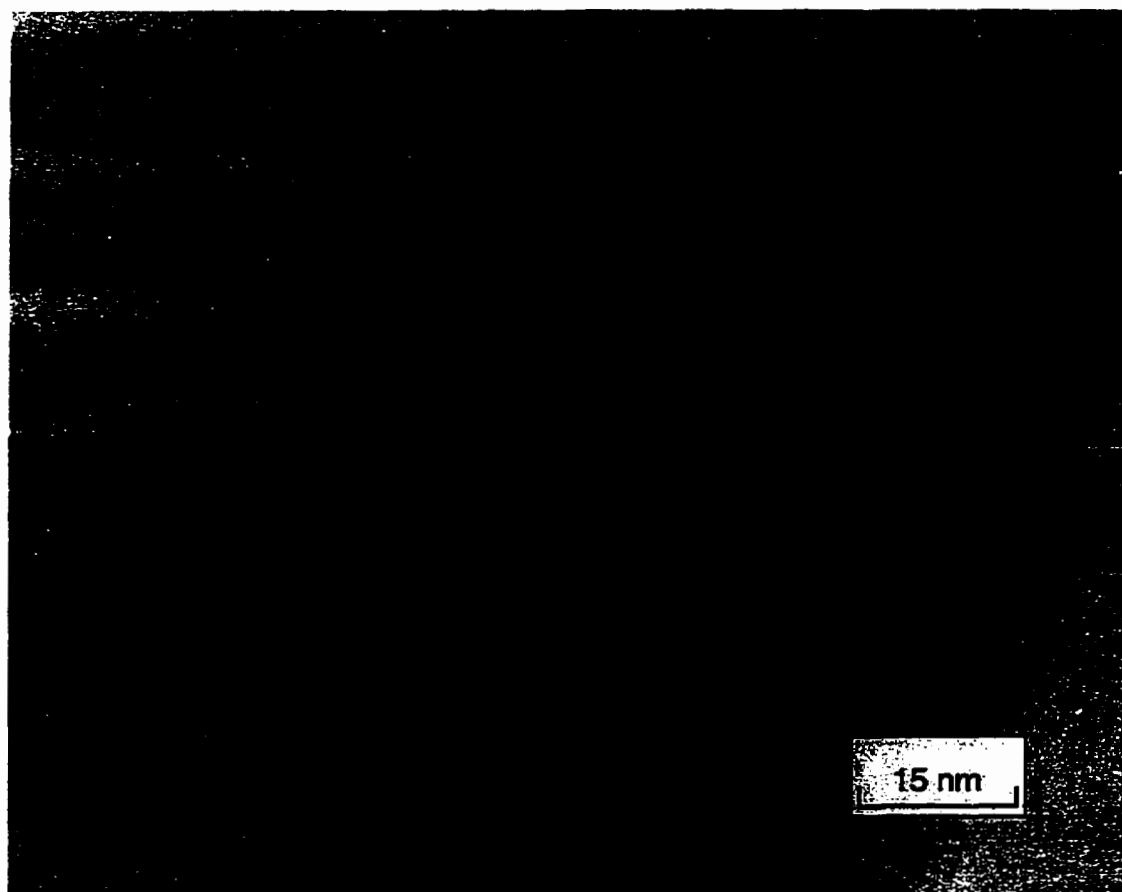


Figure 4.11: Miroir multicouche C/Si ($\sim 4.7/9$ nm, 25 périodes (0007)), grandissement de 665 000.

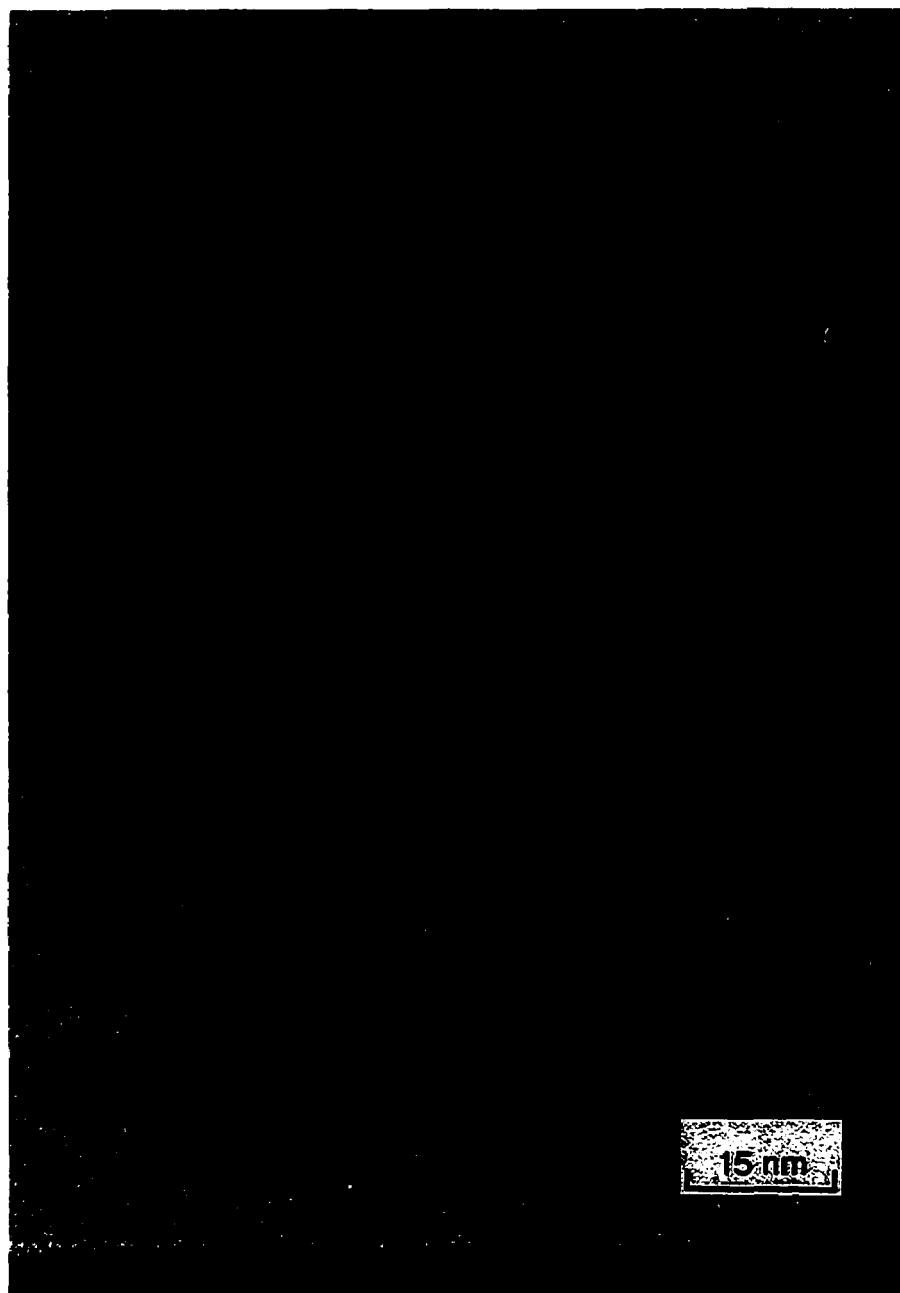


Figure 4.12: Multicouche C/Si ($\sim 7/15$ nm, 5 périodes (0011)), grandissement de 665 000.

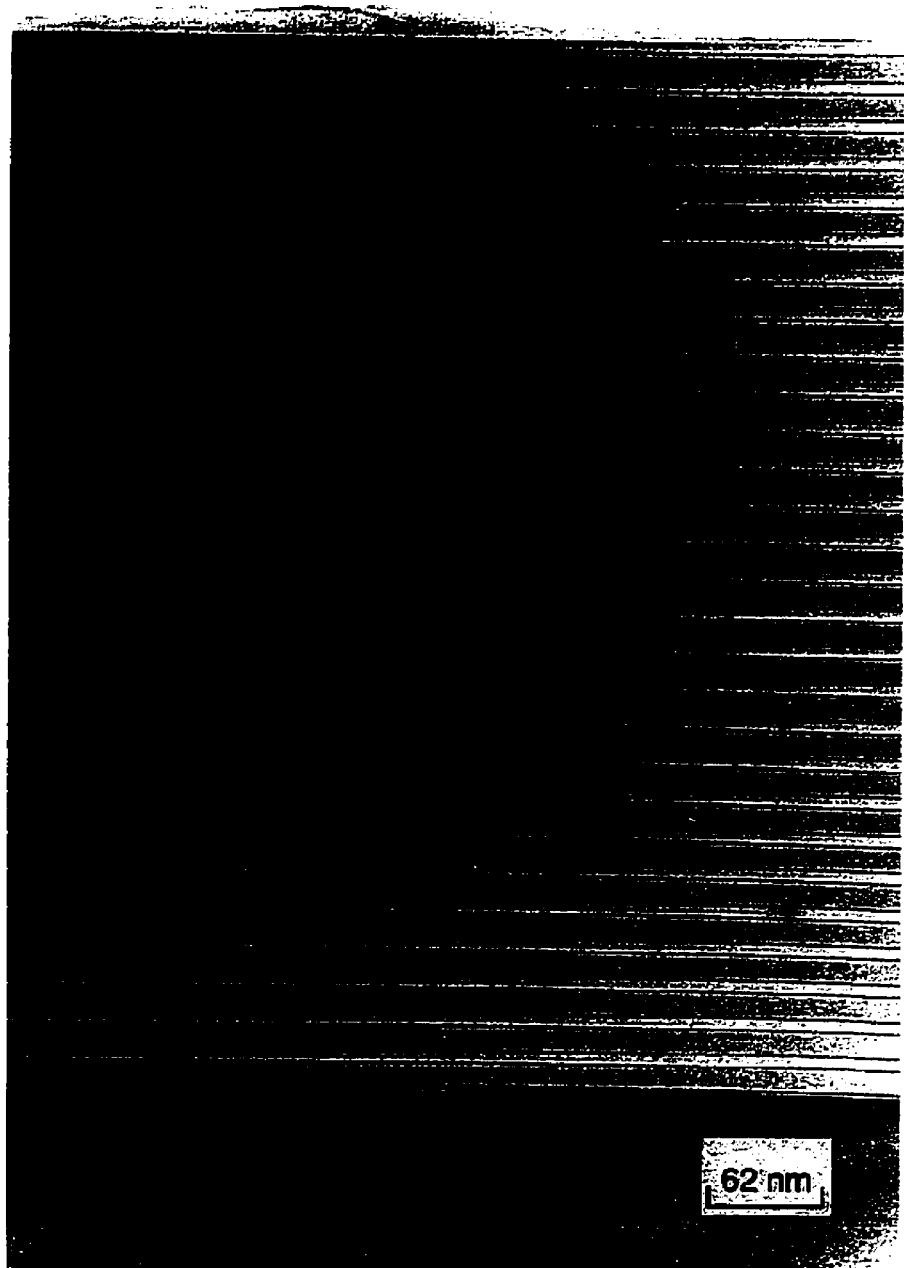


Figure 4.13: Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 440 000.

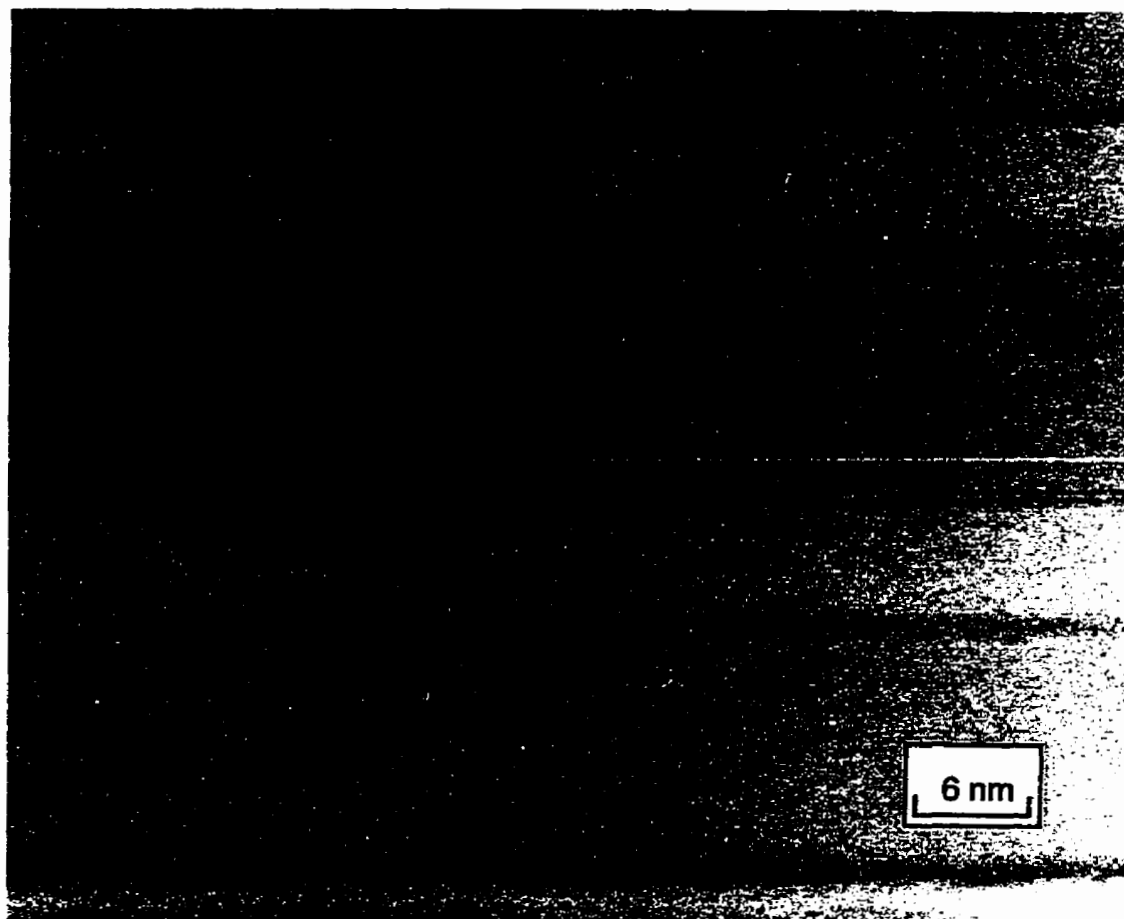


Figure 4.14: Miroir multicouche de C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000.

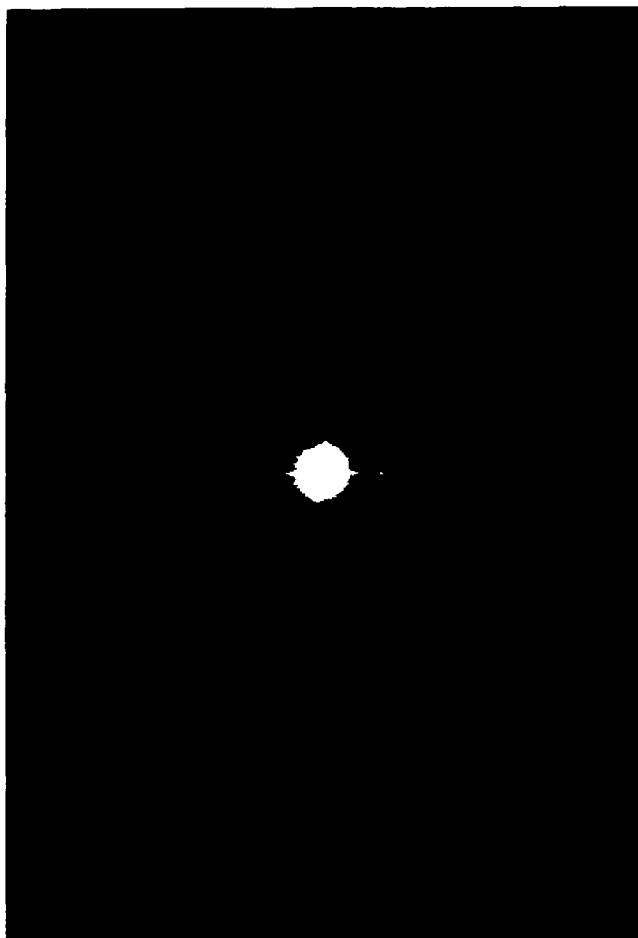


Figure 4.15: SAED (diffraction d'électrons) typique des miroirs multicouche C/Si indiquant que toutes les couches sont amorphes.

Bibliographie

- [1] A.-K. Petford-Long, M.-B. Stearns, C.-H. Chang, S.R. Nutt, D.G.Stearns, N.M. Cieglio et A.M. Hawryluk, *J. Appl. Phys* **61**, 1422 (1987).
- [2] J.P. McCaffrey, *Ultramicroscopy* **38**, 149 (1991).
- [3] Y. Lepêtre et A. Charaï, *Thin Solid Films* **105**, 71 (1983).
- [4] Y. Lepêtre et G. Rasigni, *Opt. Lett.* **9**, 433 (1984).
- [5] Y.Lepêtre, G. Rasigni, R. Rivoira, R. Philip et J.-J. Metois, *J. Opt. Soc. Am. A* **2**, 1356 (1985).
- [6] J.C.Bravman et R.Sinclair, *J.Electron. Microsc. Techn.*, **1**, 53 (1984).
- [7] J.P. McCaffrey, *J.Electron. Microsc. Techn.* **24**, 180 (1993).
- [8] J.P. McCaffrey, *Can. J. Phys.* **70**, 875 (1992).

Chapitre 5

Étude de la résistance des miroirs C/Si à des températures élevées par diffraction des rayons X (XRD) et microscopie électronique à transmission (TEM)

5.1 Considérations générales

Diverses applications des miroirs pour les rayons X exigent non seulement qu'ils aient une bonne réflectivité mais aussi une grande résistance à l'influence de l'environnement. L'effet de la température est le plus important. Lorsque les miroirs sont utilisés avec des faisceaux de rayons X ayant une grande brillance leur température peut s'élever. Il a été démontré que des températures aussi grandes que 400 – 900°C peuvent être prévues dans certains cas [1]. En conséquence de cet effet, l'inter-diffusion des matériaux, leur cristallisation (si

initialement les couches sont amorphes) et leur densification diminueront rapidement la réflectivité des miroirs. La formation de divers composés aux interfaces des couches aux températures élevées doit être également considérée. Les matériaux dont les multicouches sont composées doivent donc avoir une grande résistance à l'influence de la température.

Il existe plusieurs méthodes pour étudier la résistance des miroirs aux températures élevées. Parmi ces méthodes on retrouve la diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD), la diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD) et la microscopie électronique à transmission (TEM). La première méthode consiste en des mesures de l'intensité et du changement des positions des pics de Bragg. Le déplacement de pics ou le changement de l'intensité indiqueront les changements ayant lieu dans la structure multicouche (épaisseurs de couches, rugosité de l'interface, etc.). Cette méthode a été appliquée plusieurs fois en étudiant la résistance des multicouches Mo/Si, W/C, W/B₄C [2-4]. Son application pour les miroirs tels que C/Si est toutefois limitée¹. En effet, le contraste des constantes optiques de ces deux matériaux pour la longueur d'onde de 0.1542 nm (Cu K α) est plus petit que celui des constantes optiques, par exemple du molybdène (Mo) et du silicium (Si). Cette difficulté rend très difficile l'étude à l'aide de cette méthode.

La diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD) est également utilisée. Cette méthode peut révéler les effets tels que la cristallisation de couches ou la formation de

¹Multicouches C/Si n'ont jamais été étudiées.

composés aux interfaces. De plus, les pics présents aux petits angles de balayage $\theta - 2\theta$ peuvent donner une idée sur l'évolution de la structure multicouche lors du traitement de la température [8]. La méthode a été utilisée plusieurs fois en étudiant les multicouches Mo/Si, W/C, Ti/Si, Co/C, Pt/C [5-9]. Pour notre étude, la méthode révélerait les conditions dans lesquelles ont lieu la formation du carbure de silicium (SiC) aux interfaces ou la cristallisation des couches de carbone (C) et de silicium (Si).

La méthode la plus évidente est sans doute la microscopie électronique à transmission. L'évolution de la structure multicouche (la rugosité des interfaces, la cristallisation des couches), lorsque les températures élevées sont appliquées, est montrée sans ambiguïté par cette méthode. De plus, en utilisant le microscope électronique en mode de diffraction d'électron (SAED - *selected area electron diffraction*) la cristallisation des couches ou la formation de composés peuvent être étudiées avec une grande précision [9,10,12,13]. Aucune autre méthode ne fournit des résultats aussi valables et clairs.

Ces deux dernières méthodes ont été utilisées pour l'étude des miroirs multicouches C/Si. Afin d'étudier l'influence de la température sur les miroirs C/Si, le miroir choisi (0019) a été divisé en quatre échantillons. Trois échantillons ont été chauffés jusqu'à des températures de 200, 400, ou 600°C. Le quatrième échantillon a été conservé intact pour l'étude comparative au microscope électronique. Le chauffage a été effectué dans les conditions du vide $2 \cdot 10^{-4}$ Torr. La durée du chauffage a été de 30 min (la période pendant laquelle la température monte jusqu'à la valeur souhaitée et descend jusqu'à

$T = 23^{\circ}\text{C}$ n'est pas incluse dans cette durée). Les quatre échantillons ont par la suite été caractérisés à l'aide de la technique de diffraction aux grands angles (HAXRD) et de la microscopie électronique à transmission (TEM). Le diffractomètre utilisé est le Siemens D5000, le microscope électronique - le Philips EM430T (250 kV). Dans les deux sections qui suivent, nous présentons les résultats obtenus lors de cette étude.

5.2 Étude par diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD)

Aux figures 5.1 (a), (b), (c), (d) nous présentons les résultats obtenus en analysant les quatre échantillons étudiés. La figure 5.1 (a) représente le spectre pour l'échantillon qui n'a pas été chauffé. Le spectre enregistré est typique pour un substrat de silicium ayant une orientation 001. Puisque les multicouches sont déposées sur ce type de substrat, le seul pic présent est celui du substrat de silicium (Si) (la réflexion sur les plans (400)). L'absence d'autres pics indique que les couches du miroir sont amorphes.

Les spectres sont presque identiques pour l'échantillon chauffé jusqu'à une température de 200°C (voir 5.1 (b)). On observe seulement le pic 400 qui indique que la structure multicouche reste toujours amorphe.

La situation change toutefois en augmentant la température de chauffage. À la figure 5.1 (c), (d) nous présentons les spectres pour les échantillons chauffés jusqu'à des

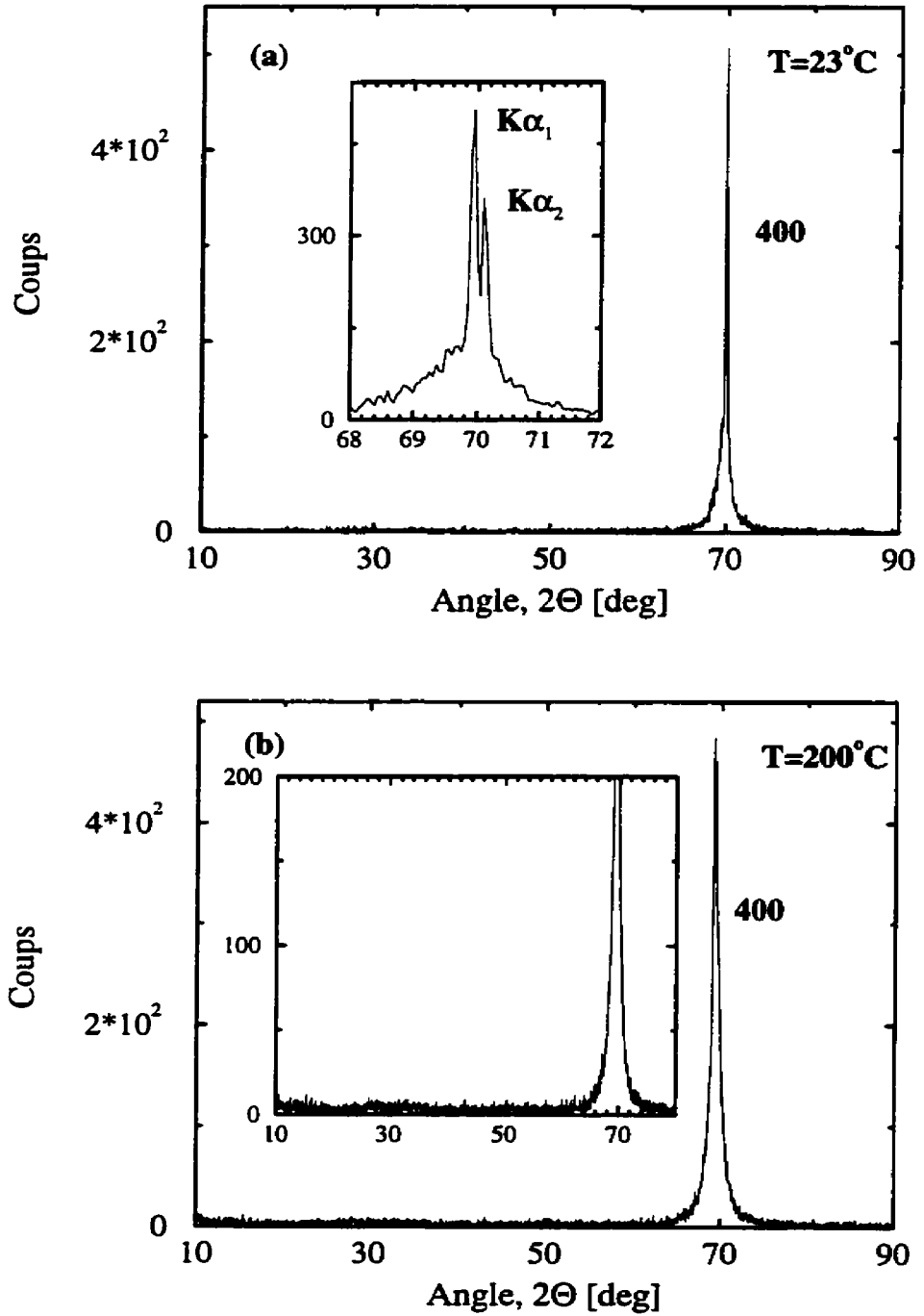


Figure 5.1: Spectres de diffraction des rayons X (HAXRD) des miroirs C/Si après le traitement de température: (a) T=23°C (sans traitement) et (b) T=200°C.

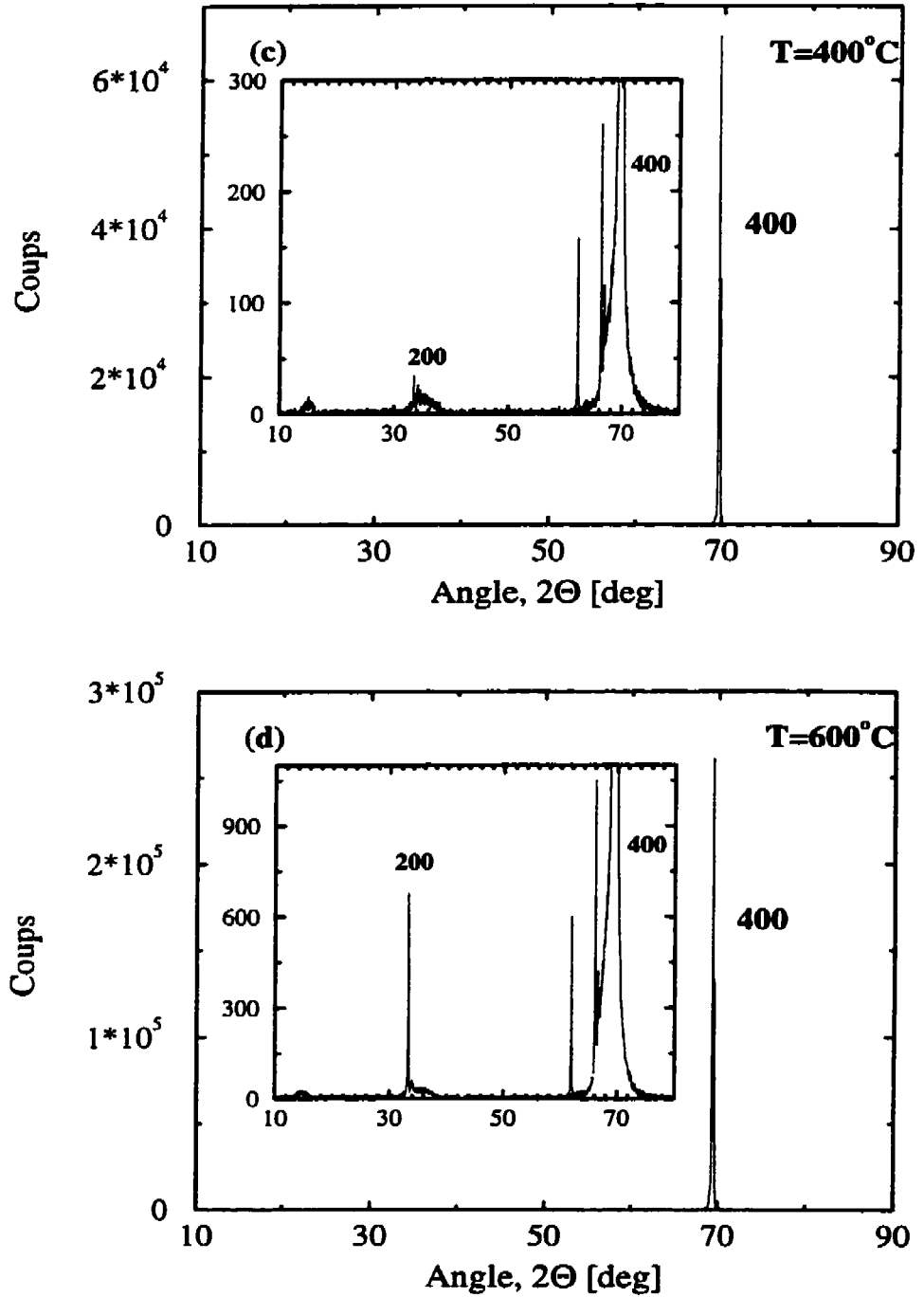


Figure 5.1: (Suite) Spectres de diffraction des rayons X (HAXRD) des miroirs C/Si après le traitement de température: (c) $T=400^{\circ}\text{C}$ et (d) $T=600^{\circ}\text{C}$.

températures de 400 et de 600°C. Premièrement, l'intensité du pic 400 monte très rapidement. Nous enregistrons également le pic 200 qui représente la diffraction de deuxième ordre sur les plans (400). Deuxièmement, nous détectons la structure fine du pic 400 du côté des petits angles. Une structure identique a été obtenue par Jou *et al.* [14] qui ont étudié le dépôt de couches de diamant par une nouvelle technique sur des substrats de silicium Si (001). Ils ont attribué cette structure à la formation du carbure de silicium (SiC) qui se forme pendant l'étape initiale du dépôt de la couche de diamant.

Initialement nous avons également pensé que cette structure détectée est due à la formation du carbure de silicium (SiC). Il est toutefois à noter que les positions des pics ne correspondent pas aux valeurs typiques des positions des pics de cette formation à diverses phases (voir [15]). De plus, l'étude par SAED (diffraction d'électrons) (voir section suivante) ne nous a pas non plus indiqué des traces de cette formation. Par contre, SAED n'a indiqué aucun changement dans les couches des miroirs, même après leur traitement à des températures aussi élevées que 600°C. Ces résultats nous ont suggéré que la structure fine du pic 400 ainsi que l'augmentation de son intensité, est plutôt un effet de substrat. Afin de vérifier cette conclusion, nous avons effectué l'étude suivante. Nous avons chauffé un miroir (No. 0020) jusqu'à une température de 600°C et nous avons ensuite enregistré les spectres (HAXRD) des deux faces du miroir. Puisque l'épaisseur du substrat est de ~ 0.3 mm, à cause de l'absorption des rayons X, le spectre enregistré de la face de substrat ne sera pas influencé par des changements (s'ils ont lieu) dans la

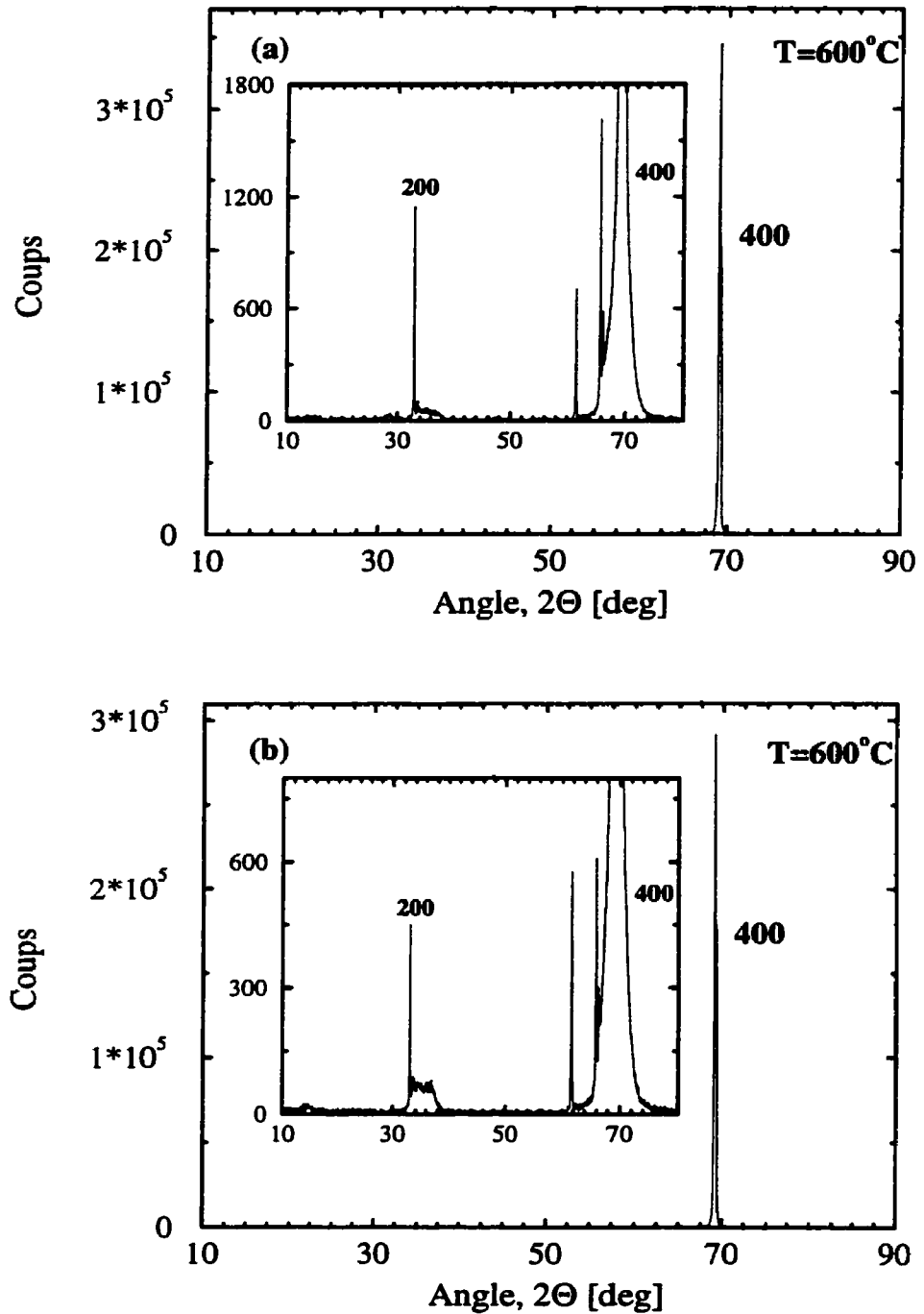


Figure 5.2: Comparaison des spectres HAXRD enregistrés pour les deux faces du miroir 0020 (a) face de multicouche et (b) face de substrat.

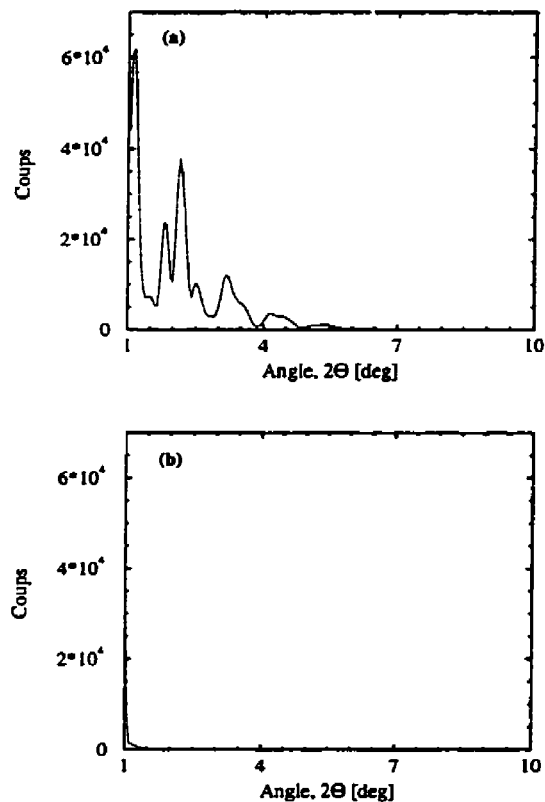


Figure 5.3: Comparaison des spectres XRD enregistrés pour les deux faces du miroir 0020 (petits angles): (a) face de la multicouche et (b) face du substrat.

structure multicouche. Le spectre représentera alors la diffraction des rayons X sur le substrat de silicium (Si) seulement. Ainsi, en comparant ces deux spectres nous serons capable de tirer des conclusions. Les résultats obtenus sont présentés à la figure 5.2 (a), (b). Nous voyons que les deux spectres sont identiques ce qui confirme notre prédiction concernant l'effet du substrat. De plus, il est à noter que l'absence des pics de modulation dans le spectre de face de substrat (figure 5.3), confirme que la diffraction sur le substrat

de silicium (Si) n'est pas influencée par la structure multicouche. Par contre, le spectre de face de multicouche montre la présence des pics de modulation aux petits angles.

En conclusion, nous n'avons pas observé la cristallisation ni du silicium ni du carbone lorsque le chauffage des miroirs a été effectué à des températures aussi élevées que 600°C. La formation du carbure de silicium (SiC) aux interfaces n'a pas non plus été observée.

5.3 Étude par microscopie électronique à transmission (TEM)

Dans la section précédente nous avons présenté les résultats des analyses de miroirs chauffés jusqu'à des températures élevées par la technique de diffraction des rayons X. Bien que cette étude nous ait indiqué que les couches des miroirs ne se cristallisent pas même aux températures aussi élevées que 600°C, l'évolution des structures multicouches (périodicité, interfaces) lors du traitement de température n'a toutefois pas été démontrée. La méthode convenant le mieux pour cette analyse est la microscopie électronique à transmission. Dans les pages qui suivent (figures 5.4 - 5.10) nous présentons les photographies obtenues en analysant les quatre échantillons auparavant étudiés par la technique de HAXRD. Le microscope électronique utilisé est le Philips EM430T (250 kV). Les échantillons ont été préparés et observés au microscope électronique par J. McCaffrey du CNRC. Les conclusions suivantes peuvent être tirées:

1. La structure multicouche demeure stable lors de son traitement à des températures allant jusqu'à des valeurs aussi grandes que 600°C. La durée de traitement a été de 30 min.
2. Les interfaces de couches lors du traitement de température demeurent planes. Cependant, l'inter-diffusion des couches ainsi que l'asymétrie des interfaces (C-Si et Si-C) deviennent de plus en plus élevées. Une largeur plus grande d'interface Si-C (la couche de Si est déposée sur la couche de C) que d'interface C-Si est déjà observée aux températures de 200°C.
3. Les couches de toutes les multicouches lors du traitement jusqu'à des températures aussi élevées que 600°C, demeurent amorphes. Les photographies de diffraction d'électrons n'indiquent ni cristallisation des couches ni formation de composés aux interfaces.

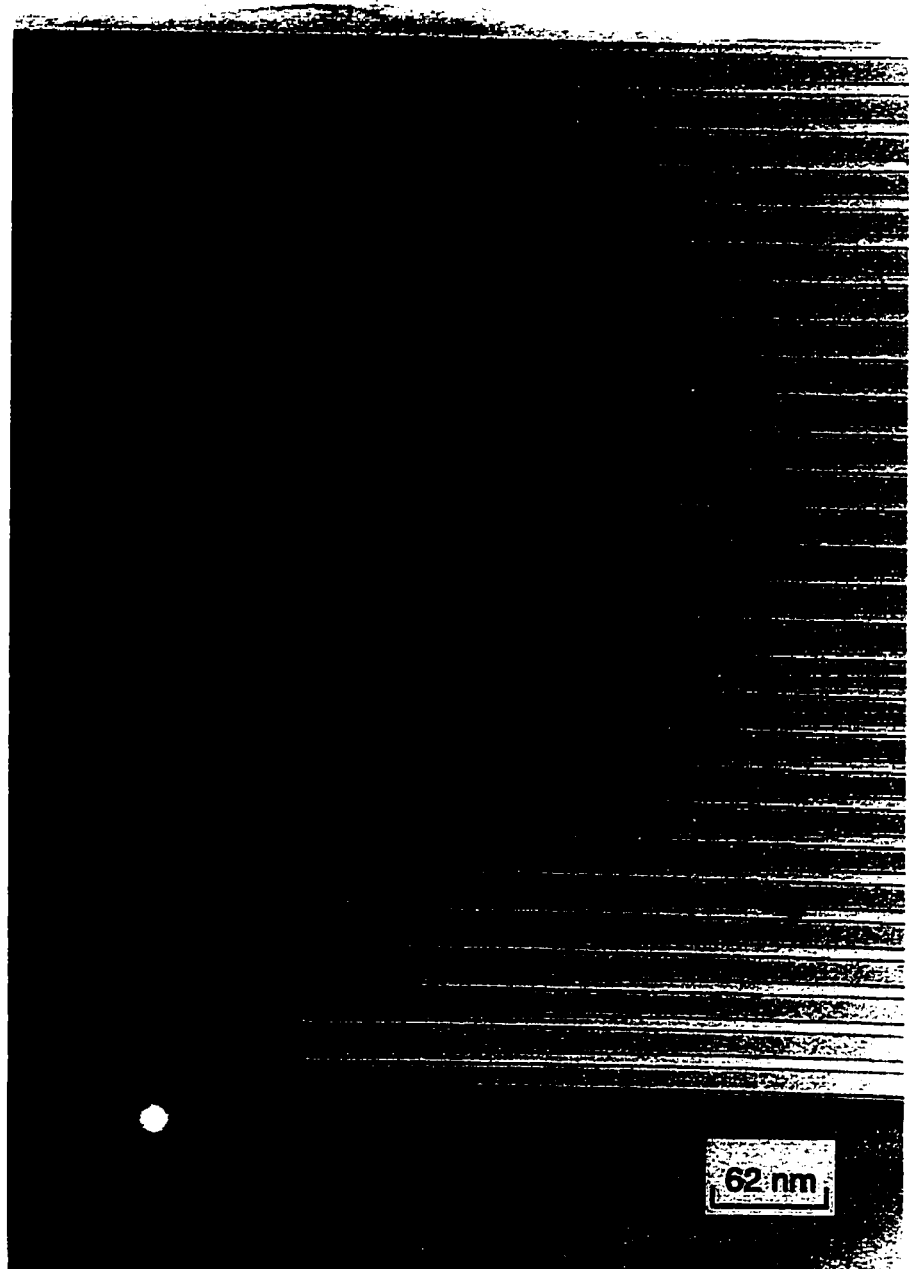


Figure 5.4: Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 440 000, sans traitement de température. Dans le coin gauche est présenté la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.

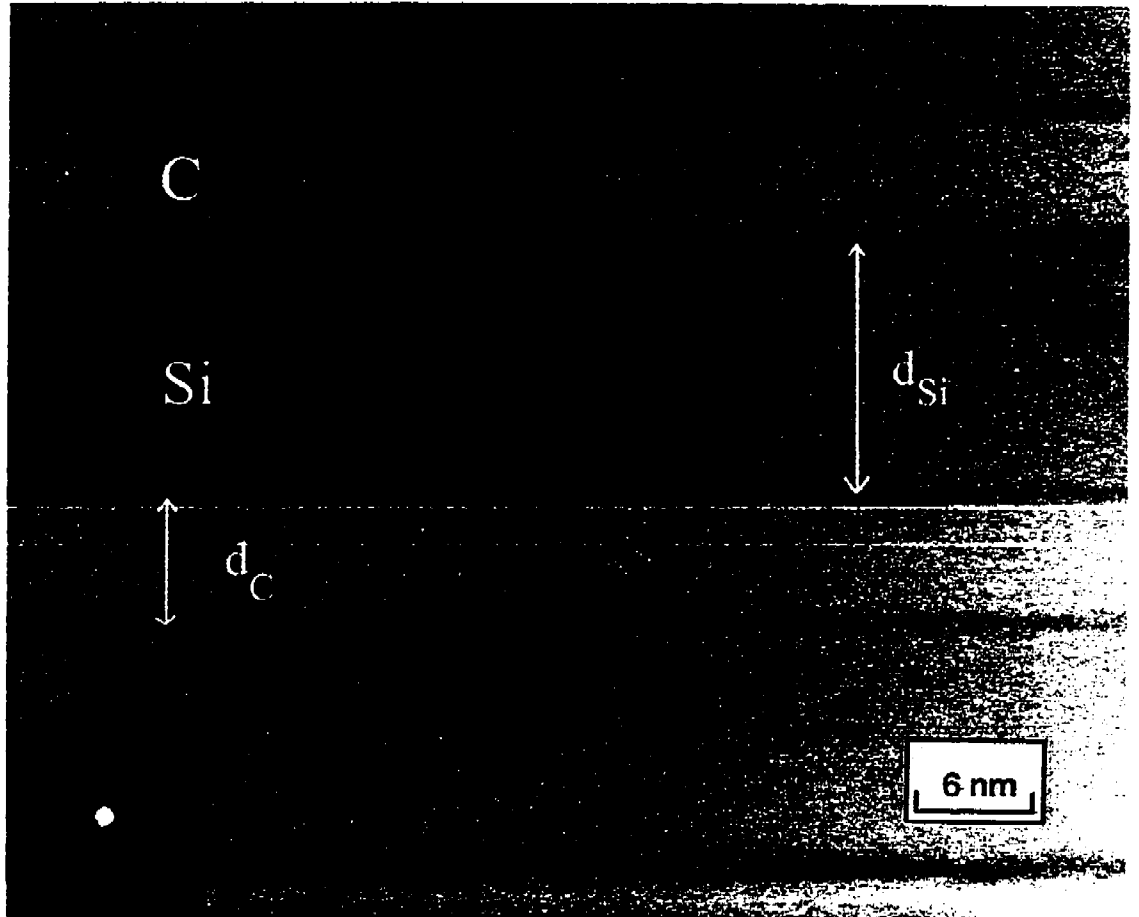


Figure 5.5: Miroir multicouche de C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000, sans traitement de température. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.

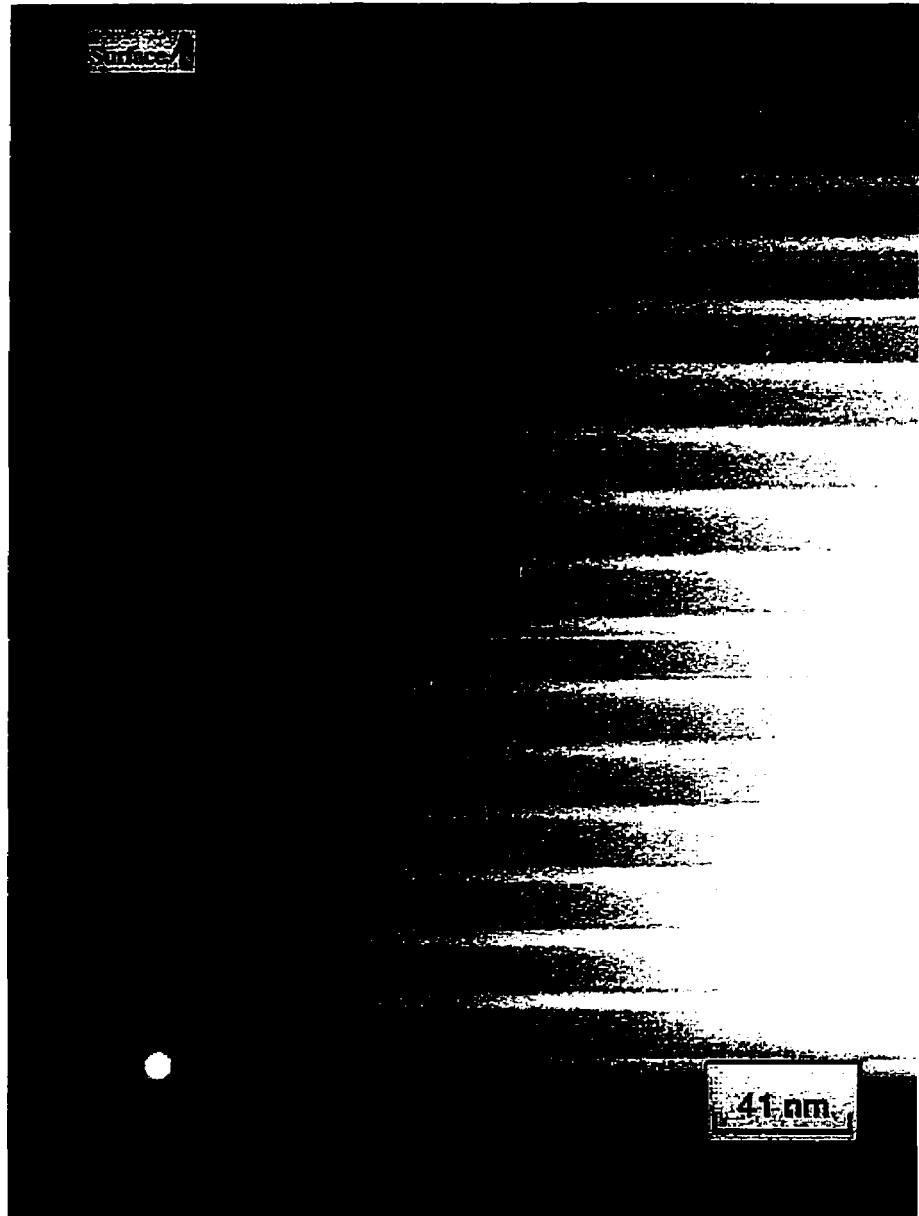


Figure 5.6: Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 490 000. $T=200^\circ\text{C}$. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.

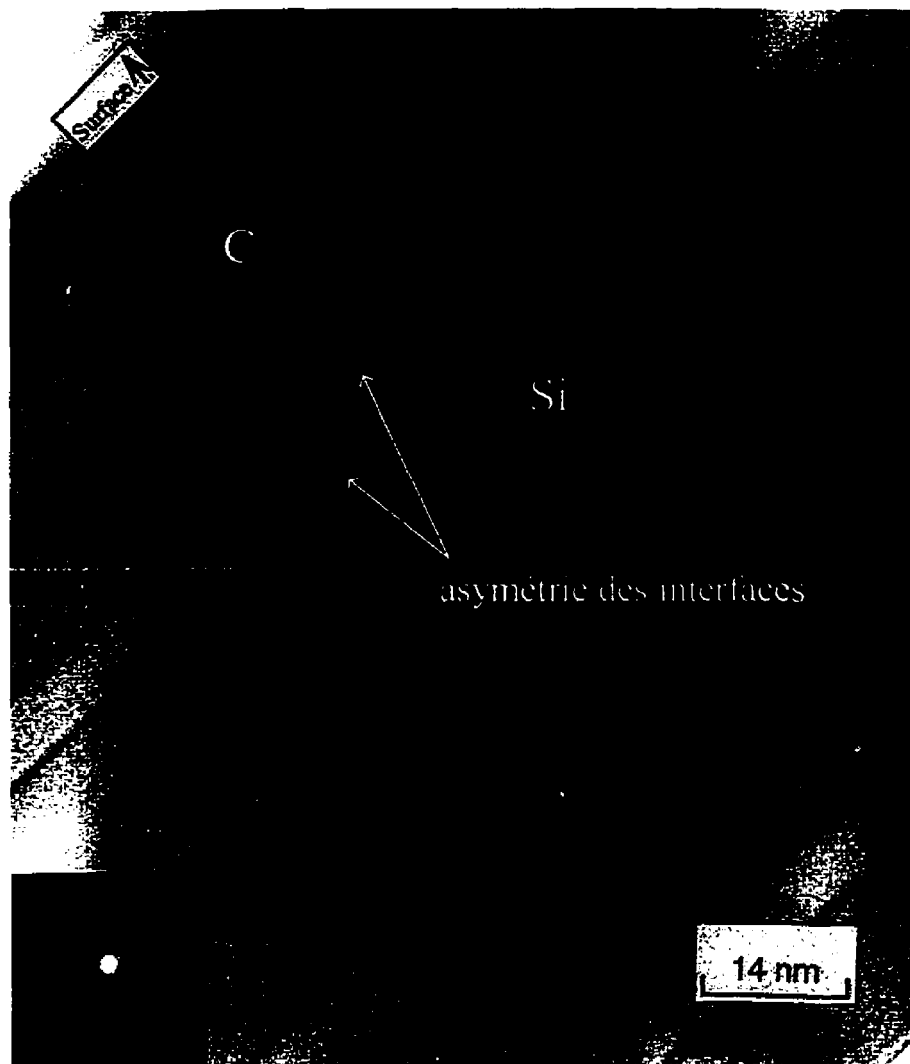


Figure 5.7: Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000. $T=200^\circ\text{C}$. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.

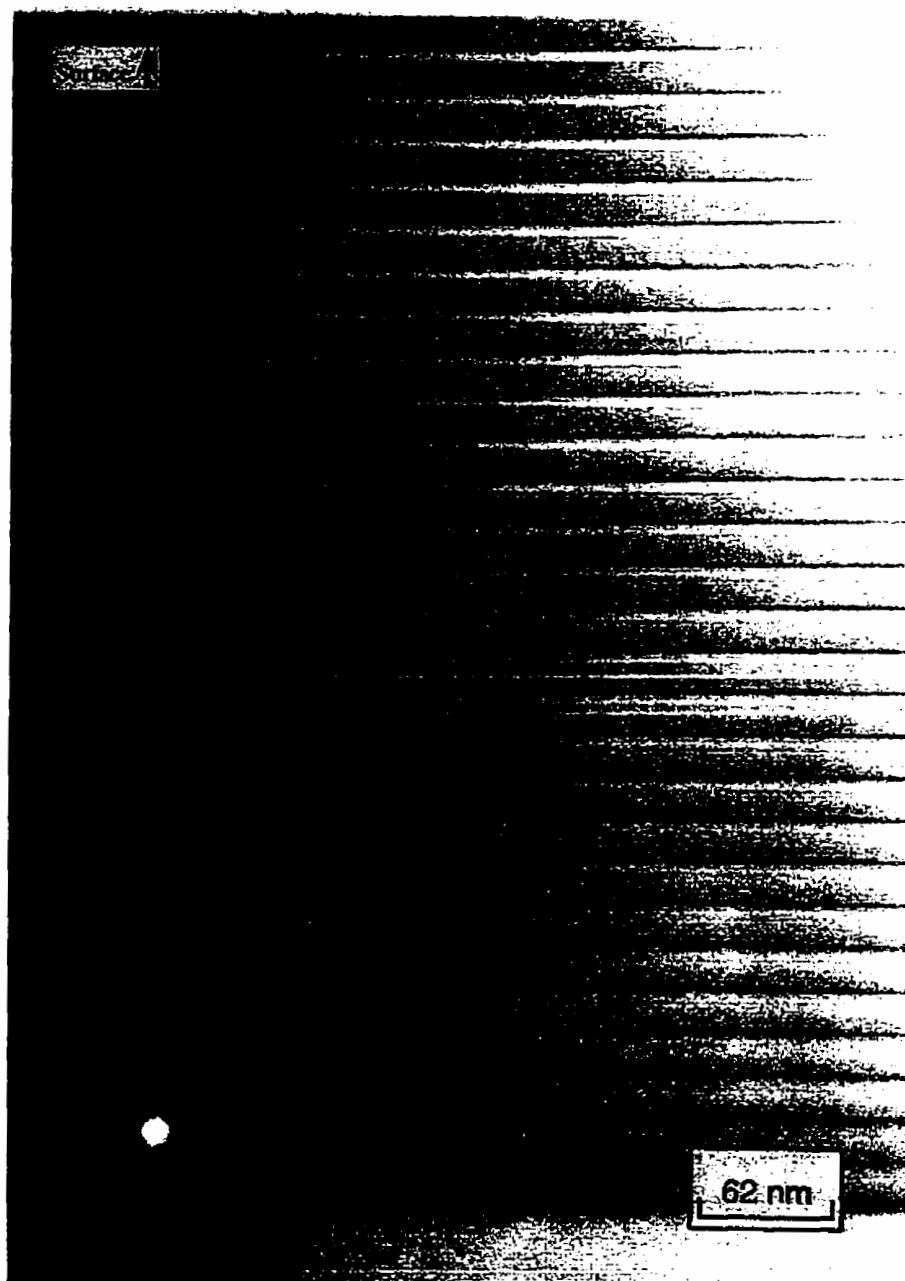


Figure 5.8: Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement d 490 000. $T=400^{\circ}\text{C}$. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.

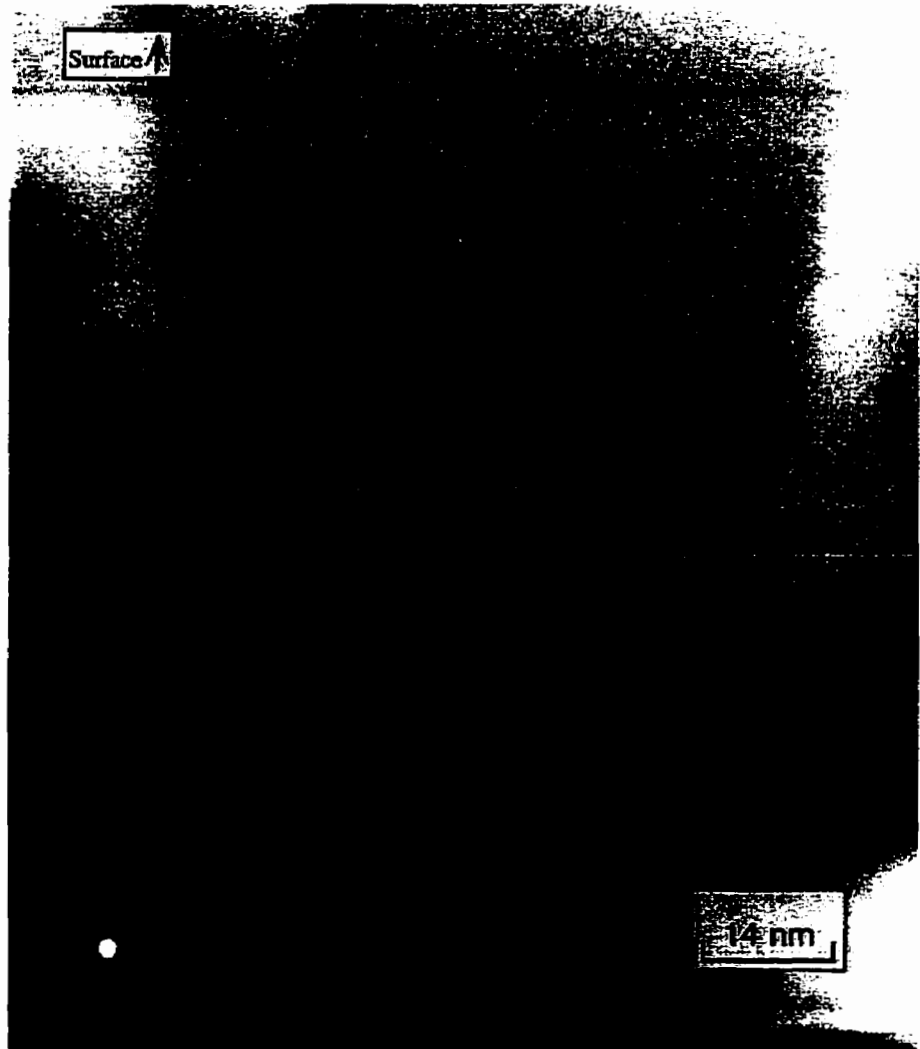


Figure 5.9: Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000. $T=400^{\circ}\text{C}$. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.

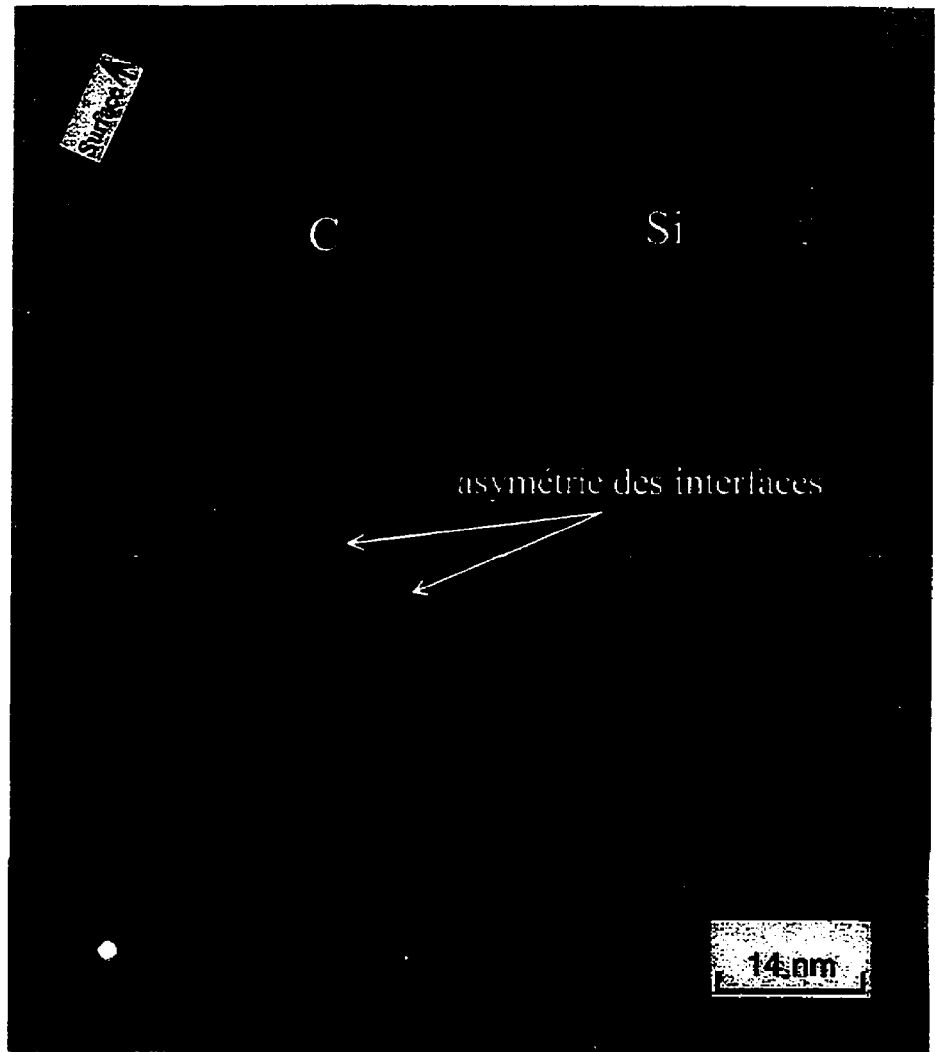


Figure 5.10: Miroir multicouche C/Si ($\sim 6.3/14.4$ nm, 28 périodes (0019)), grandissement de 661 000. $T=600^\circ\text{C}$. Dans le coin gauche est présentée la photographie de la diffraction d'électrons (SAED) indiquant que toutes les couches sont amorphes.

Bibliographie

- [1] E. Ziegler, Y. Lepetre, S. Joksch, V. Saile, S. Mourikis, P.J. Viccaro, G. Rolland et F. Lauger, *Rev. Sci. Instrum.* **60**, 1999 (1989).
- [2] voir par exemple H. Takenaka, T. Kawamura et Y. Ishii, *J. Appl. Phys.* **78**, 522 (1995).
- [3] A.F. Jankovski et D.M. Makowiecki, *Opt. Engin.* **30**, 2003 (1991).
- [4] A.F. Jankovski, L.R. Schrawayer et M.A. Mall, *J. Appl. Phys.* **68**, 15 (1990).
- [5] W.K. Wang, W.H. Wang et H.Y. Bai, *Mat. Sc. Eng.* **A179/A180**, 234 (1994).
- [6] G.S. Lodha, S.Pandita, A. Gupta, R.V. Nandedkar et K. Yamashita, *Appl. Phys. A* **62**, (1996).
- [7] H.L. Bai, E.J. Jiang, C.D. Wang et D.C. Sun, *J. Appl. Phys.* **80**, 1 (1996).
- [8] H.Y. Bai, W.H. Wang, H. Chen, Y. Zhang et W.K. Wang, *Phys. Stat. Sol A* **136** 411 (1993).

-
- [9] D.G. Stearns, M.B. Stearns, Y.Cheng, J.H.Stith et N.M. Cieglio, *J. Appl. Phys.* **63**, 2415 (1990).
- [10] S. Herd, K.N. Tu et K.Y. Ahn, *Appl. Phys. Lett.* **42**, 1 (1983).
- [11] K. Holloway, K.B. Do et R. Sinclair, *J. Appl. Phys.* **61**, 1359 (1987).
- [12] K. Holloway et R. Sinclair, *J. Appl. Phys.* **65**, 474 (1989).
- [13] M. Nathan, *J. Appl. Phys.* **63**, 5334 (1988).
- [14] S. Jou, H.J. Doerr et R.F. Bunshah, *Thin Solid Films* **253**, 95 (1994).
- [15] *Diffraction Data of Inorganic Compounds*, Joint committee for Powder Diffraction Standards, Swarthmore, PA, 1991.

Chapitre 6

Caractérisation des miroirs multicouches C/Si par la spectroscopie des électrons Auger (AES) et par l'analyse chimique par spectroscopie d'électrons (ESCA)

6.1 Généralités

L'étude précédente des multicouches C/Si a révélé leurs caractéristiques principales, soit la réflectivité à incidence normale et à incidence rasante, la périodicité de la structure, la qualité des interfaces et la résistance des miroirs aux températures élevées. Les techniques utilisées n'ont toutefois pas permis l'analyse de la composition atomique des structures. Des données sur la composition atomique des multicouches sont importantes, puisqu'elles pourraient démontrer la contamination présente dans les couches. Normalement, la con-

tamination des couches altère les constantes optiques des matériaux. Cet effet est particulièrement important dans la région spectrale des rayons X mous [1,2].

Il serait également intéressant d'étudier la formation du carbure de silicium (SiC) (s'il a lieu) aux interfaces des couches. À noter que la diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD) (voir Chapitre 5) n'a pas indiqué la présence du carbure de silicium. En effet, cette technique est seulement sensible aux composés sous formes cristallisées et ne peut pas donc révéler le carbure de silicium en phase amorphe.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats obtenus en analysant les multicouches C/Si à l'aide des techniques AES et ESCA. Ces deux techniques sont des outils indispensables pour l'analyse de composition atomique des matériaux puisqu'elles sont sensibles aux premières couches atomiques du matériau analysé. Les études des multicouches C/Si qui ont été accomplies, sont la profilométrie de multicouches par AES, la détermination de la composition de multicouches par ESCA et la profilométrie des interfaces de couches par ESCA et AES.

Le spectromètre ESCALAB MK II a été utilisé pour les mesures par ESCA. La ligne du rayonnement utilisée est la Mg $K\alpha$ (1253.6 eV). Le faisceau d'ions d'argon ($E= 5$ keV, $I= 30 \mu\text{m}$, $J=30 \mu\text{A}/\text{cm}^2$) a été utilisé pour effectuer le décapage des échantillons lors de la profilométrie de l'interface des multicouches. Les expériences (AES et ESCA) ont été réalisées par A. Adnot du CERPIC.

La profilométrie AES de multicouches et de l'interface a été effectuée en mode de cycles (10 s de décapage par le faisceau d'argon $E=5$ keV, 100 nA pour C/Si (5nm/11nm) et 200 nA pour C/Si (10nm/22nm)), suivi par l'analyse AES (faisceau d'électrons $E=10$ keV, 30 nA).

La profilométrie à balayage (AES) en ligne passant à travers le cratère a été effectuée après le bombardement de la multicouche C/Si (5nm/11nm) par le faisceau d'argon $E=5$ keV, 100 nA pendant 16 min.

6.2 Profilométrie des multicouches par AES

Comme nous l'avons spécifié auparavant, les deux techniques, AES et ESCA, sont très spécifiques aux premières couches atomiques du matériau. Nous pouvons mettre à profit cette caractéristique pour mesurer, avec une très bonne résolution en profondeur, des variations de concentration en fonction de l'épaisseur. Il suffit pour cela d'éroder la surface progressivement et de mettre à nu séquentiellement les couches internes pour pouvoir les analyser par ces deux techniques.

La profilométrie AES a été appliquée plusieurs fois pour l'analyse des miroirs multicouches telles que W/C, W/B₄C, Mo/Si, Mo/B₄C, Ni/C [3-5]. La plus grande difficulté de cette analyse est que les épaisseurs des couches sont du même ordre que la résolution de la technique elle-même. De plus, divers effets tels que le mixage atomique, la rugosité

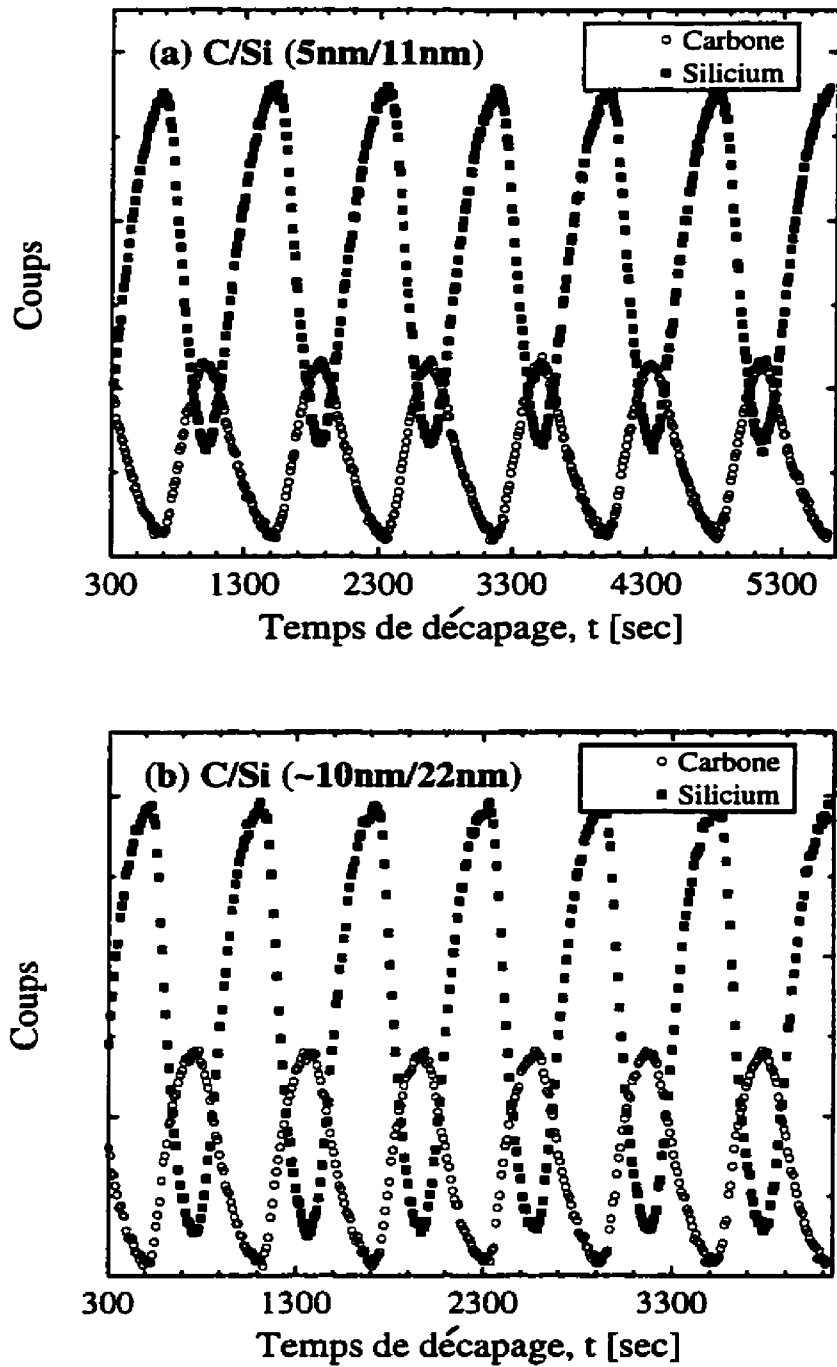


Figure 6.1: Profilométrie AES de deux multicouches C/Si: (a) Multicouche 0015 (C/Si 5nm/11nm) et (b) Multicouche 0013 (C/Si 10nm/22nm).

induite par le décapage, la pulvérisation préférentielle, l'implantation, etc., détériorent la résolution d'analyse. Ces effets peuvent parfois être délicats à contrôler et ont fait l'objet d'études spécifiques (voir par exemple réf. [6]). Malgré ces difficultés, pour les multicouches C/Si, nous avons obtenu de très bons résultats.

Nous avons effectué la profilométrie de deux multicouches C/Si (5nm/11nm et 10nm/20nm) (14 premières couches). Les résultats obtenus sont présentés à la figure 6.1 (a), (b). Brièvement, cette analyse confirme les conclusions tirées à partir des analyses par la microscopie électronique à transmission (TEM) et la diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD): les multicouches fabriquées sont très périodiques et ont des interfaces abruptes.

6.3 Mesures de la composition en surface par ESCA

À la figure 6.2, nous présentons le spectre ESCA de la composition de surface de la multicouche 0015 (C/Si 5 nm/11 nm). Seulement les pics représentant l'oxygène, l'argon, le silicium et le carbone sont observés. Étant donné que la couche de surface est celle du carbone et que l'épaisseur de cette couche est du même ordre que la résolution de la technique elle-même, la présence des pics du carbone et du silicium est naturelle. La présence du pic de l'argon est due à la contamination des couches lors de la fabrication des miroirs. La présence de l'oxygène (concentration typique en surface est entre 10 et

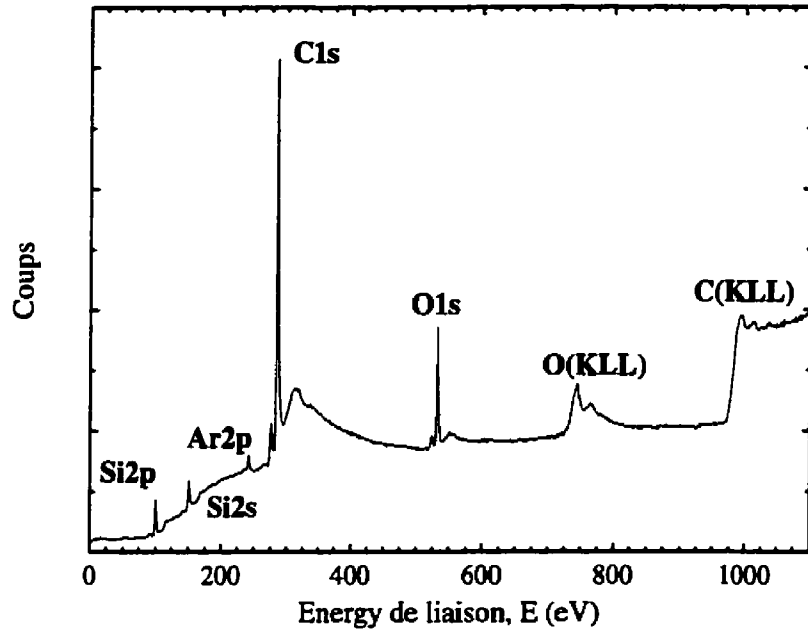


Figure 6.2: Spectre ESCA de la surface de la multicouche C/Si (5nm/11nm).

15 %) est due à la contamination de multicouches pendant l'exposition à l'environnement atmosphérique. La concentration de l'oxygène diminue très rapidement, en partant de la surface vers l'intérieur, et devient inférieure à $\sim 0.3\%$ à une profondeur d'environ ~ 1.5 nm (3 min de décapage enlève une couche d'environ 1.7 nm d'épaisseur).

À la figure 6.3 (a) (b), nous présentons les pics du carbone (C 1s) et du silicium (Si 2p) qui ont été enregistrés à haute résolution et en utilisant deux angles d'incidence de l'analyse (70 et 15 degrés). Ces pics sont larges et asymétriques. L'analyse par la synthèse de pic nous indique qu'ils peuvent être décomposés de la manière montrée à la

figure 6.3 (a) (b). Les composantes de C 1s (figure 3 (a)) nous attribuons à C-C (284.5 eV, FWHM=1.6±0.1 eV) et diverses formations telles que C-O, C=O, etc. (285.5, 287.3 eV, FWHM=1.8±0.1 eV), les dernières étant présentes à cause de l'oxydation du carbone. Pour Si 2p, la synthèse de pic montre la présence de Si-Si (99.5 eV, FWHM=1.5±0.1 eV) et de SiO_x (x < 2) (101.3 eV, FWHM=1.8±0.1 eV) (figure 6.3 (b)). Les valeurs de l'énergie de liaison, que nous avons trouvées, sont en bon accord avec celles rapportées par les autres auteurs [7-9].

Il est à noter que les pics de Si 2p, enregistrés en incidences de 70 et 15 degrés ont des formes très différentes. En comparant ces pics, nous pouvons constater que la concentration de SiO_x très rapidement diminue en profondeur vers l'intérieur. En effet la concentration de SiO_x dépend de la quantité d'oxygène qui aussi diminue rapidement

En conclusion, la surface des multicouches C/Si ne contient que du silicium, du carbone et des contaminants, soit de l'oxygène et de l'argon ¹. La contamination par l'oxygène diminue rapidement vers l'intérieure de la surface. À une profondeur de ~ 1.5 nm, les multicouches ne contiennent que ~ 0.3% d'oxygène.

À la même figure (6.3 (a), (b)), nous présentons les pics enregistrés après le décapage de surface d'une durée de 3 min (~ 1.7 nm). L'asymétrie des pics C 1s indique toujours les formations C-O, C=O, leurs intensités étant déjà plus faibles (la concentration de l'oxygène à cette profondeur est beaucoup moins grande). De plus, du côté des énergies

¹La contamination par l'argon n'a pas été étudiée.

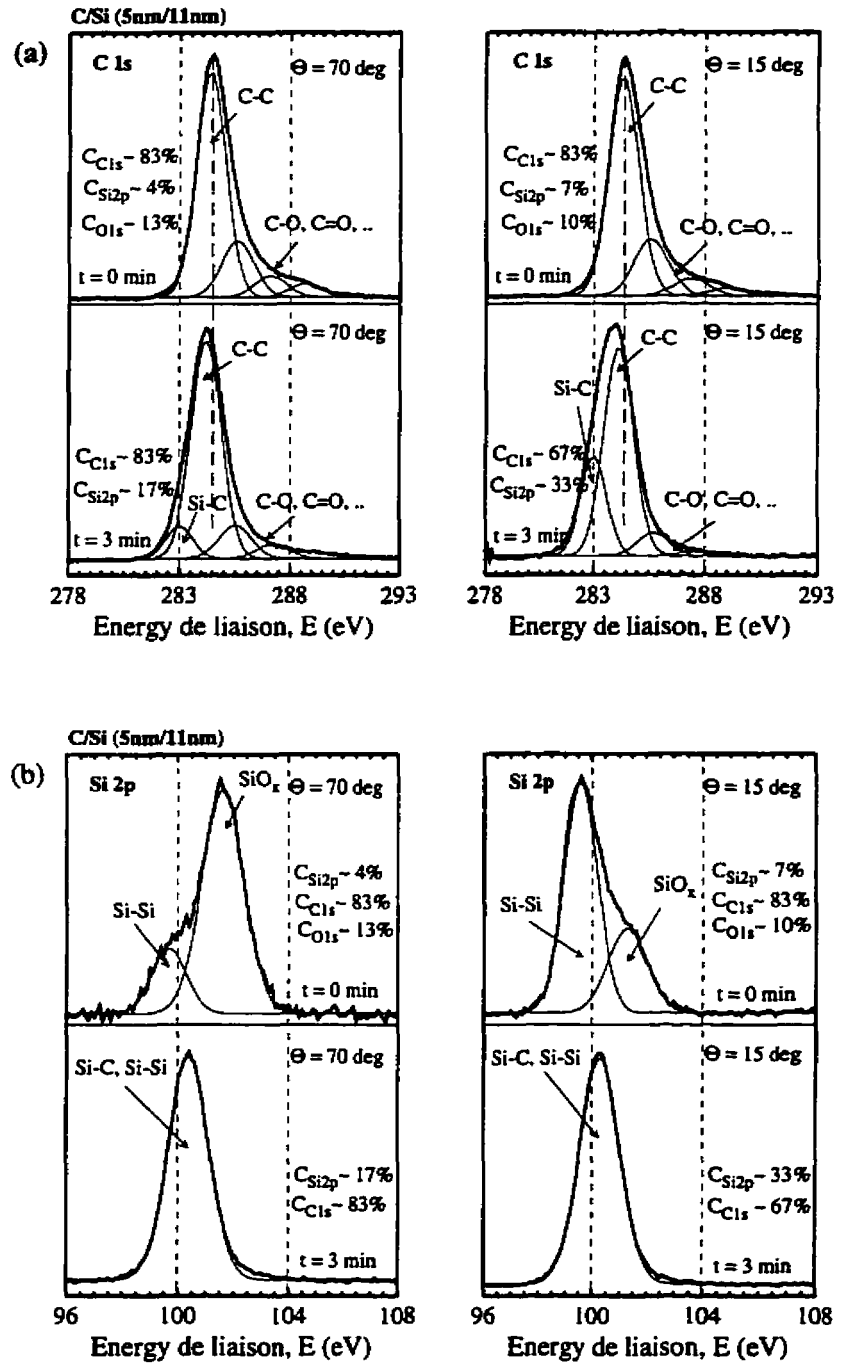


Figure 6.3: Pics ESCA de C 1s (a) et Si 2p (b) enregistrés à haute résolution pour la multicouche 0015 (C/Si 5nm/11nm). Les concentrations calculées à partir des surfaces de pics sont très approximatives.

plus petites, la synthèse de pic indique qu'il faut considérer la présence d'un autre pic que nous attribuons au carbure de silicium (SiC) (283.0 eV, FWHM=0.6 eV). La présence de ce pic est surtout évidente dans les spectres enregistrés en utilisant l'incidence de 15 degrés. Ceci indique que le carbure de silicium (SiC) se situe plus profondément, c'est-à-dire en dessous des premières couches atomiques de la surface. Il est donc possible que le carbure de silicium se situe à l'interface du carbone et du silicium. Pour étudier cet effet, nous avons effectué la profilométrie de l'interface C-Si.

6.4 Profilométrie de l'interface par ESCA

Pour l'analyse expérimentale, nous avons choisi la multicouche 0013 (C/Si 10nm/22nm). Une plus grande épaisseur des couches permettra d'identifier le carbure de silicium et sa localisation dans les multicouches avec moins d'ambiguïté. À la figure 6.4 (a) et (b), nous présentons les résultats expérimentaux et ceux de l'analyse par la synthèse de pic, pour les pics C 1s et Si 2p.

Pour C 1s, nous observons que suite au décapage l'intensité du pic de SiC devient de plus en plus élevée, par rapport à celle du pic de C. Normalement, cela indiquerait que l'on approche l'interface de Si-C, où se situe le carbure de silicium. Cependant, il existe une autre possibilité. La présence de SiC peut être induite par le mixage ionique d'un faisceau d'ions utilisé lors du décapage. Dans ce cas, l'intensité du pic de SiC serait

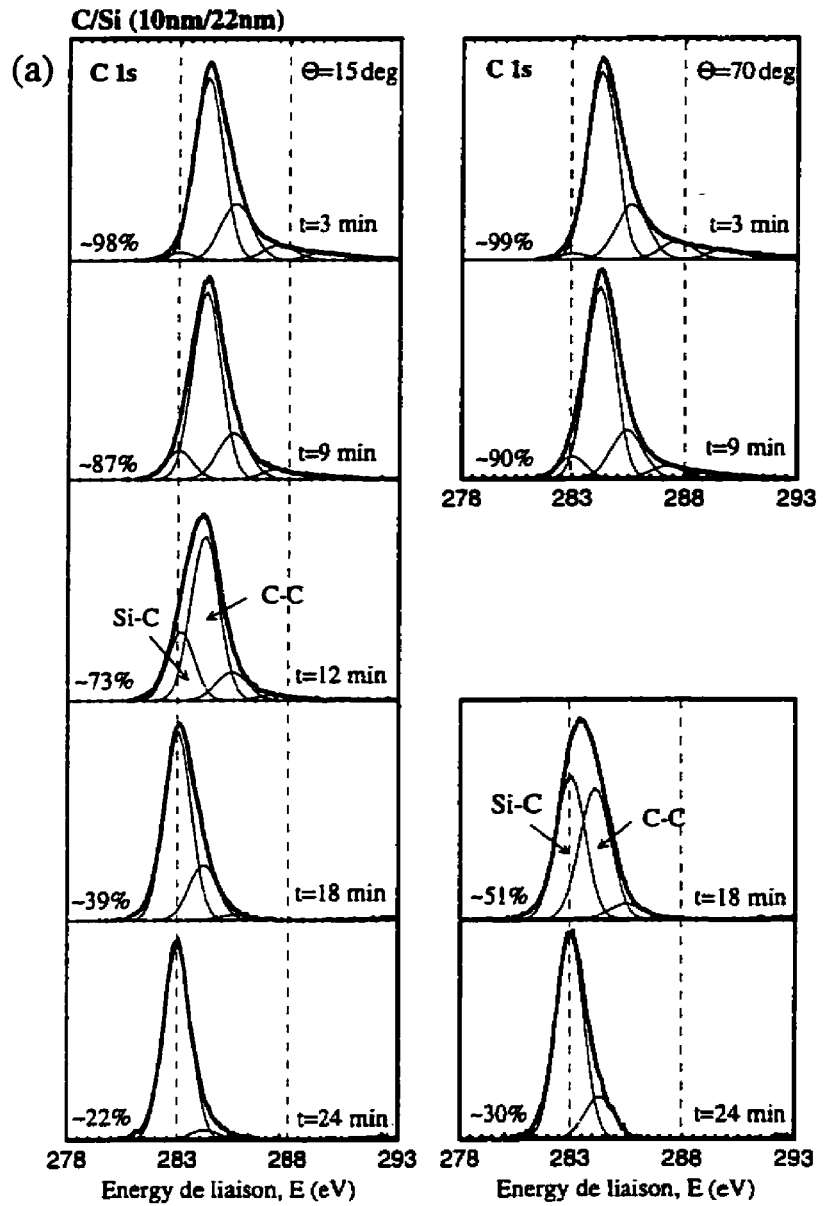


Figure 6.4: Profilométrie de l'interface C-Si par ESCA; pics de C 1s (a) et Si 2p (b) enregistré à haute résolution pour la multicouche 0013 (C/Si 10nm/22nm).

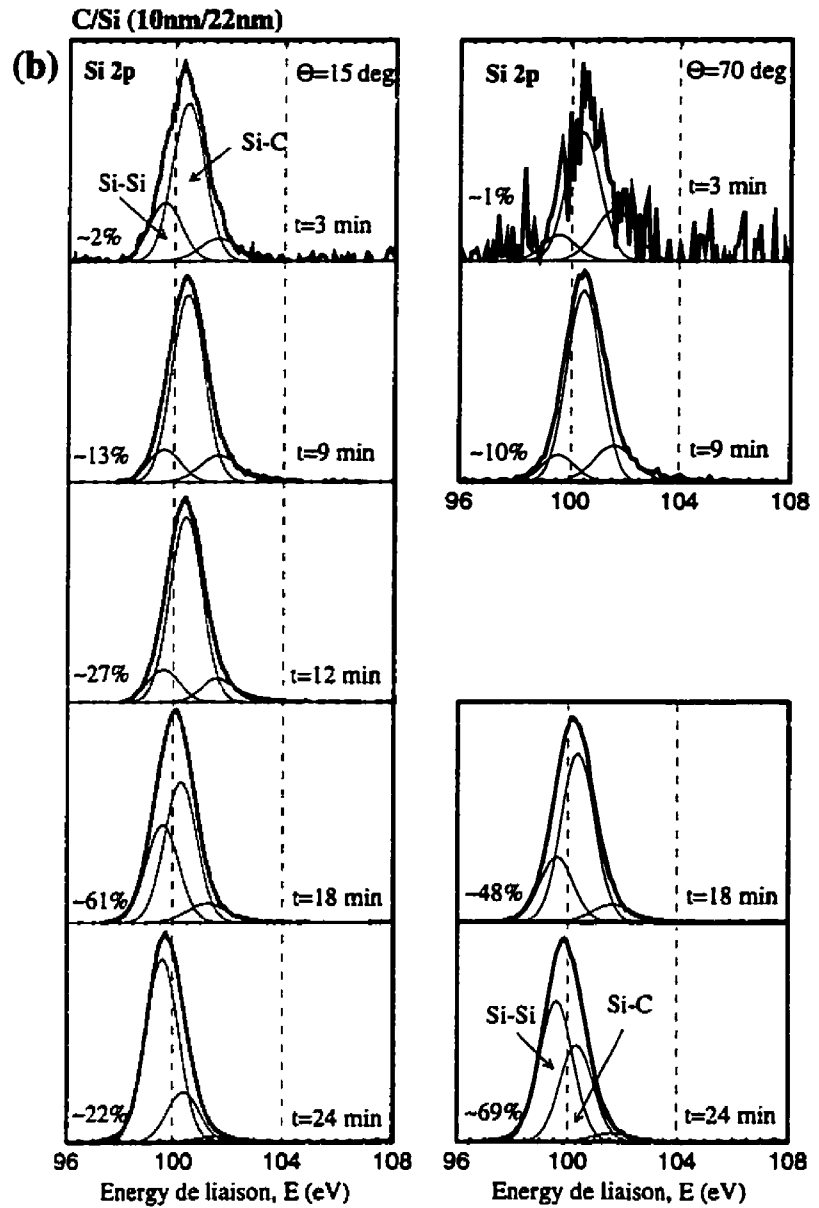


Figure 6.4: (Suite) Profilométrie de l'interface par AES. Pics de C 1s (a) et Si 2p (b) de multicouche C/Si (10nm/22nm) enregistrés en mode de haute résolution.

faible en surface puisqu'une faible concentration du silicium ne permet pas au faisceau d'ions de former efficacement le carbure de silicium. Lorsque la concentration de silicium augmente, l'intensité de SiC augmente également, c'est ce qu'on observe à la figure 6.4.

Des résultats semblables sont obtenus en analysant les pics de Si 2p (figure 6.4 (b)). L'intensité du pic de SiC est faible au début mais augmente avec l'augmentation de la concentration du silicium.

Il est à noter que l'étude par la synthèse de pic est très incertaine. Il arrive que cette procédure donne plusieurs solutions d'une qualité équivalente. D'autres informations sont également nécessaires pour tirer des conclusions fiables sur la formation du carbure de silicium. À cette étape, nous pouvons néanmoins constater que la présence du carbure de silicium a réellement été observée dans les multicouches.

6.5 Profilométrie de l'interface par AES

Bien que AES n'est généralement pas considérée comme étant une technique qui permet l'identification de l'état chimique, des exceptions sont toutefois bien connues, notamment le carbone [10–12]. Les pics du carbone (graphite) et du carbure de silicium (les pics de référence) sont présentés à la figure 6.5. Dans notre cas, la comparaison des pics enregistrés en effectuant la profilométrie de l'interface avec ceux de référence peut nous donner une idée sur la présence du carbure de silicium dans les multicouches.

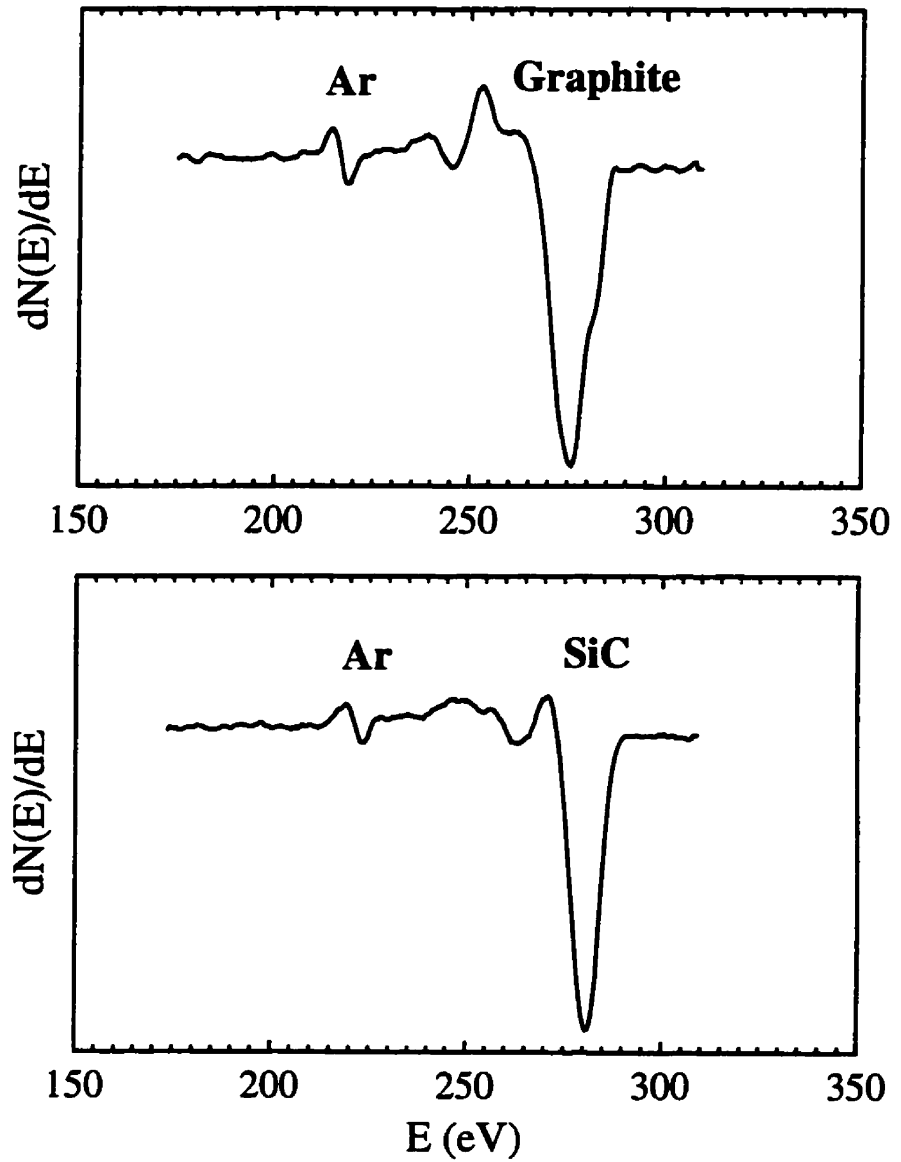


Figure 6.5: Pics AES de référence pour le carbone (graphite) et pour le carbure de silicium.

Deux types d'analyses ont été accomplis. Lors de la première analyse, la multicouche 0015 (C/Si 5nm/11nm) a été bombardée par le faisceau d'ions afin de nettoyer des contaminants la surface et de produire un cratère d'allure gaussienne. Les spectres AES ont été par la suite enregistrés en déplaçant la sonde d'analyse à travers ce cratère. Lors de ce balayage on réalise ainsi un profil en profondeur en analysant différents points à des profondeurs différentes. Si le carbure de silicium est présent aux interfaces, dans les spectres enregistrés, les pics du carbone doivent périodiquement changer leur forme pour celles du carbure de silicium. Les résultats obtenus sont présentés à la figure 6.6. Lors du balayage du cratère, nous ne remarquons pas un changement notable dans les formes des pics. De plus, les formes des pics sont plus semblables à celles du carbure de silicium (en effet, on observe la superposition des pic de SiC et de C), ce qui indique que le carbure de silicium est présent partout dans la multicouche, non seulement aux interfaces.

Des résultats semblables ont été obtenus en effectuant le second type d'analyse - la profilométrie de l'interface à haute résolution. La profilométrie a été accomplie de la façon suivante: la multicouche est alternativement décapée (10 s de décapage par le faisceau d'argon) et analysée par AES. Les résultats obtenus sont présentés à la figure 6.7 et 6.8. Nous pouvons voir (figure 6.8) que la forme de tous les pics de carbone correspond à celle des pics de SiC. Cette analyse suggère également que le carbure de silicium est présent partout, non seulement aux interfaces des couches.

Il est à noter que les deux techniques, AES et ESCA, utilisent le bombardement

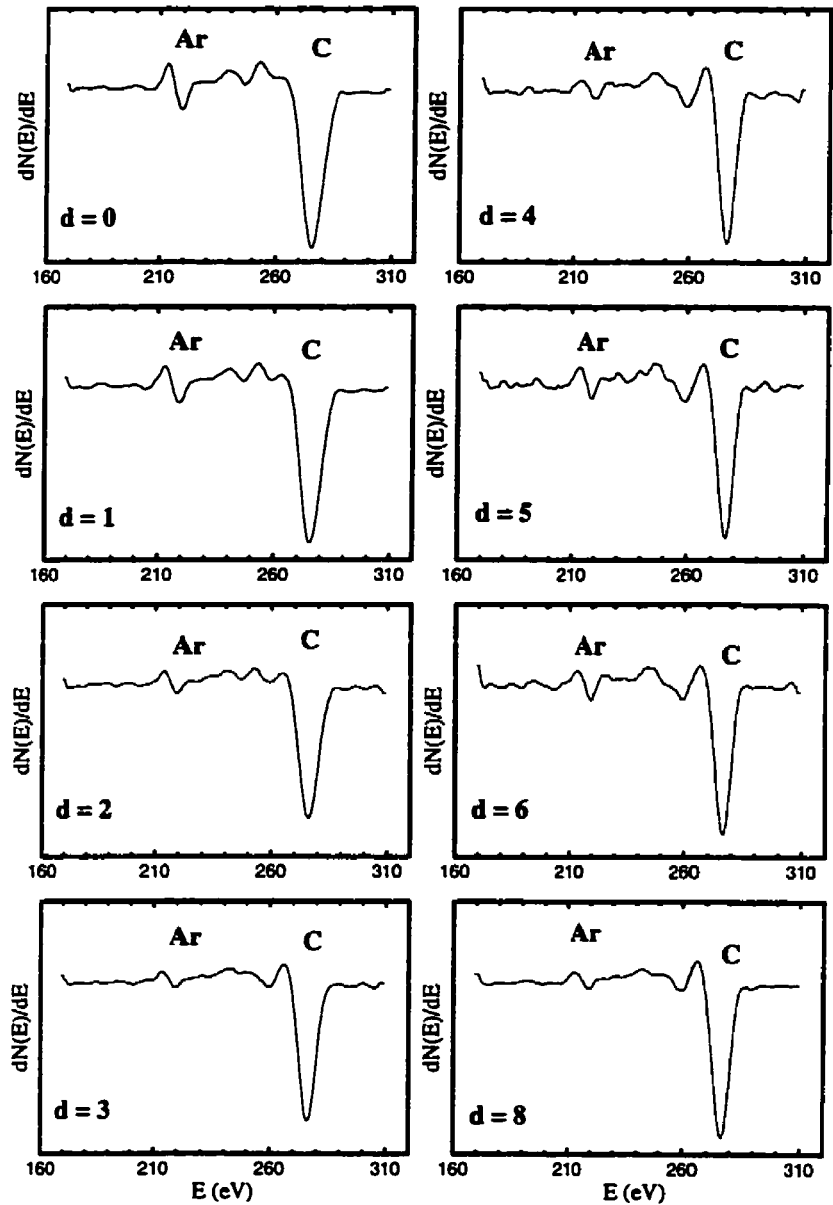


Figure 6.6: Spectres AES ($dN(E)/dE$) du carbone à haute résolution sur la ligne passant approximativement par le centre du cratère; des spectres ont été pris à tous les millimètres ($d=0$ à $d=8$). La multicouche analysée est C/Si(5nm/11nm). Le temps de décapage est de 16 min.

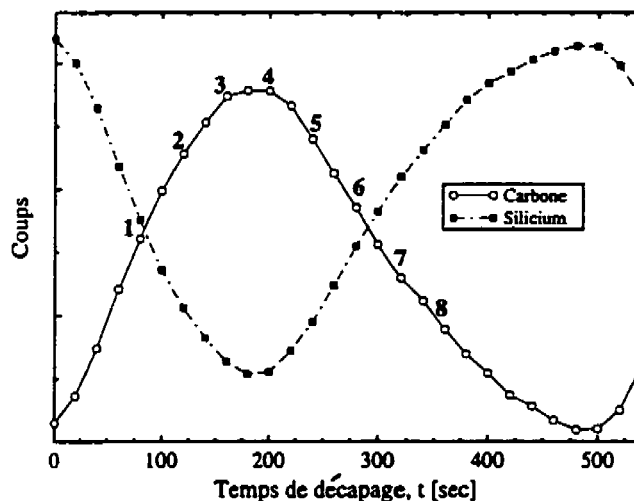


Figure 6.7: Profilmétrie AES à haute résolution de l'interface de la multicouche C/Si (5nm/11nm).

ionique lors du décapage des échantillons. Le mixage ionique pourrait alors être prévu dans les deux cas. De plus, il faut tenir compte que le faisceau d'électrons utilisé par AES peut causer l'élévation de la température de la surface. Il a été rapporté par exemple que pour des paramètres semblables du faisceau d'électrons, la température du substrat de SiO_2 peut monter au point d'impact du faisceau jusqu'à des valeurs aussi grandes que 800°C [13]. Dans notre cas, ceci peut également être la cause de la formation du carbure de silicium.

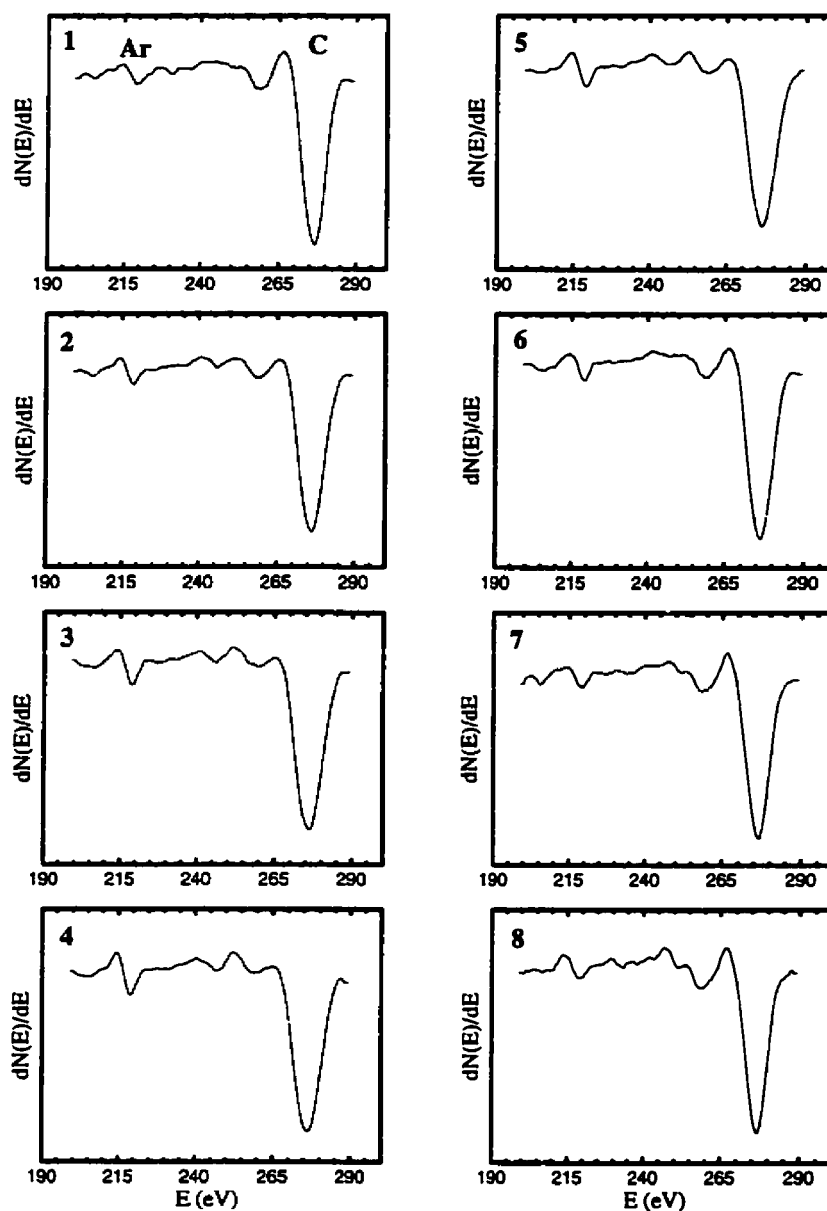


Figure 6.8: Spectres AES ($dN(E)/dE$) du carbone à haute résolution lors de la profilométrie de l'interface (multicouche C/Si(5nm/11nm)). Les spectres correspondent aux points de la figure précédente.

6.6 Profilométrie de l'interface par ESCA *in situ*

Afin de séparer les effets induits par les techniques d'analyse, l'étude de la profilométrie de l'interface *in situ* a été accomplie. L'interface des couches de carbone et de silicium fabriquée et analysée lors de la fabrication, a été par la suite analysée lors de son décapage par ESCA. Cette méthode permet de savoir sans ambiguïté si le carbure de silicium se forme pendant la fabrication des multicouches ou si sa présence est induite pendant l'analyse. Pour cette étude, une couche de silicium et une couche de carbone ont été déposées sur le substrat de silicium, couvert auparavant par une couche mince d'aluminium. Ce type de substrat a été utilisé afin d'éviter l'influence du substrat sur l'analyse ².

Pour l'analyse, une couche mince de silicium a été déposée sur ce substrat suivie par le dépôt d'une couche mince de carbone. L'analyse par ESCA a été effectuée en même temps. Le bombardement par le faisceau d'ions a été appliqué par la suite. Les résultats, obtenus lors du processus de fabrication, sont présentés à la figure 6.9 (a), (b), (c), (d), (e). Nous pouvons voir que le carbure de silicium est observé aussitôt que le dépôt de la couche de carbone est lancé (figure 6.9 (b)) (en effet, une petite quantité du carbure de silicium est observée même avant le dépôt du carbone (figure 6.9 (a)), probablement due à la contamination du système à vide par le carbone, ce qui facilite la

²Le substrat de silicium est normalement couvert par une couche mince de silicium oxydé. Le nettoyage de cette couche, par le bombardement ionique, pourrait produire le carbure de silicium déjà avant l'analyse [12], ce qui compliquera l'interprétation de données.

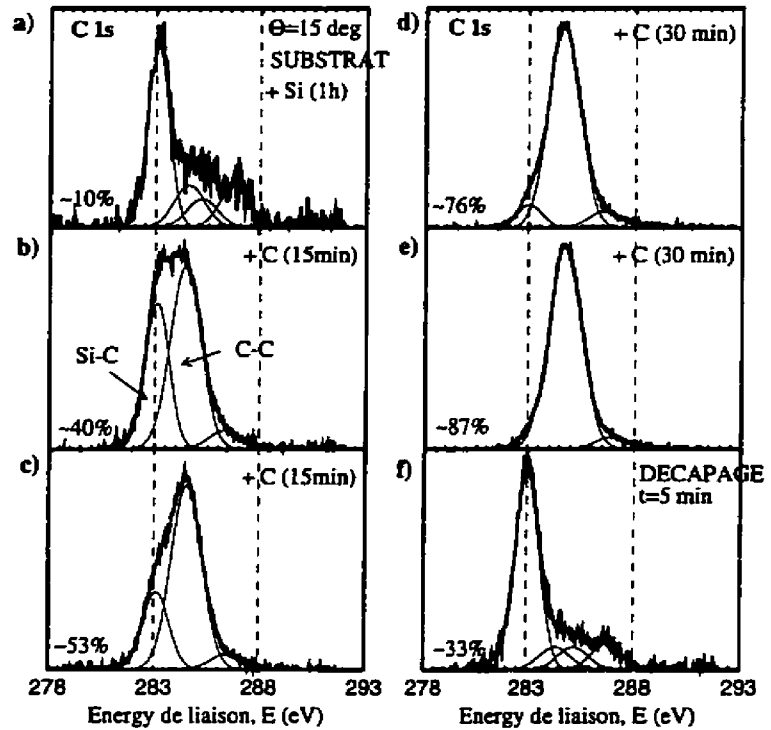


Figure 6.9:

Étude de l'interface C/Si par ESCA *in situ*: (a) pic C1s après le dépôt du silicium pendant 1h, (b) pic C1s après le dépôt du carbone pendant 15 min, (c) pic C1s après le dépôt supplémentaire du carbone pendant 15 min, (d) pic C1s après le dépôt supplémentaire du carbone pendant 30 min, (e) pic C1s après le dépôt supplémentaire du carbone pendant 30 min, (f) pic C1s après le décapage de la structure pendant 5 min.

formation de SiC lors du dépôt de silicium). En continuant le dépôt, l'intensité de son pic diminue rapidement. Les résultats, présentés à la figure 6.9 (f), ont été obtenus après le bombardement de la structure pendant 5 min, aussitôt après sa fabrication. Le spectre présenté montre essentiellement le carbure de silicium. Étant donné qu'après le dépôt du carbone les spectres ESCA n'ont pas indiqué la présence du carbure de silicium, nous pouvons conclure que le carbure de silicium a été essentiellement induit par le mixage ionique du faisceau d'ions utilisé pour le décapage. Le carbure de silicium, observé lors de la profilométrie de l'interface des multicouches C/Si, est réel, cependant sa présence est quantitativement exagérée par le mixage ionique produit par le faisceau de décapage.

Bibliographie

- [1] J.M. Slaughter, D.W. Shulze, C.R. Hills, A. Miron, R. Stalio et C.M. Falco, *J. Appl. Phys* **76**, 2144 (1994).
- [2] I.V. Kozhevnikov, L.L. Balakireva, A.I. Fedorenko, I.A. Kopelets, V.E. Levashov, A.N. Stetsenko, I.I. Struk et A.V. Vinogradov, *Opt. Commun.* **125**, 13 (1996).
- [3] S.S. Andreev, A.D. Akhsakhalyan, M.N. Drozdov, N.J. Polushkin et N.N. Salashchenko, *Thin Solid Films* **263**, 169 (1995).
- [4] A.F. Jankowski, L.R. Schrawayer, M.A. Wall, W.W. Craig, R.J. Morales et D.M. Makowiecki, *J. Vac. Sci. Technol. A* **7**, 2914 (1989).
- [5] J.P. Petrakian et P. Renucci, *Surf. Sc.* **195**, 151 (1988).
- [6] H.H Andersen et H.L. Bay, *Sputtering by particle bombardment* Ed. R. Behrisch. *Topics in Applied Physics*. Vol. 47, Springer Verlag, Heideilberg, 1985.
- [7] J.S. Pan, A.T.S. Wee, C.H.A. Huan, H.S. Tanet et K.L. Tan, *J. Appl. Phys.* **79**, 2935 (1996).

-
- [8] J.S. Kusunoki et Y. Agari, *App. Surf. Sci.* **59**, 95 (1992).
- [9] A.T.S. Wee, Z.S. Feng, H.H. Hng, K.L. Tan, C.C. Tin, R. Hu et R. Coston, *App. Surf. Sc.* **81**, 377 (1994).
- [10] E. Kny, *J. Vac. Sci. Technol.* **17**, 658 (1980).
- [11] J.T. Grant et T.W. Haas, *Surf. Sci.* **24**, 332 (1971).
- [12] T.W. Haas, J.T. Grant et G.J. Dooley, *J. Appl. Phys.* **43**, 1853 (1972).
- [13] J.M. Fontaine et C. Legressus, *Le vide* **36**, 11 (1981).

Chapitre 7

Conclusions

Nous avons réalisé une étude théorique de la réflectivité de matériaux élémentaires et de miroirs multicouches dans la région spectrale 25-40 nm. Nous avons proposé plusieurs nouvelles combinaisons pour la fabrication des miroirs multicouches, utilisant le silicium (Si) et l'aluminium (Al) comme matériaux non-absorbants, dans cette région spectrale. Cela inclut les combinaisons C/Si (C/Al), Au/Si (Au/Al), Y/Si (Y/Al), Nb/Al, La/Si (La/Al), B₄C/Al dans la région spectrale 25-30 nm et les combinaisons C/Si (C/Al), Au/Si (Au/Al), Pt/Si (Pt/Al), Mn/Si (Mn/Al) dans la région spectrale 30-40 nm. Nous avons également considéré l'application de combinaisons telles que Mo/Si, B₄C/Si, Nb/Si, proposées par les autres auteurs pour la région spectrale en dessous de 25 nm. Les combinaisons proposées donnent des valeurs de réflectivité théorique entre 27 et 40 %, si les combinaisons sont basées sur le silicium (Si) et des valeurs de réflectivité théorique entre 35 et 50 %, si elles sont basées sur l'aluminium (Al), dans la région spectrale 25-

30 nm. Dans la région spectrale 30-40 nm, les combinaisons basées sur le silicium (Si) donnent des valeurs de réflectivité théorique entre 25 et 45 % et des valeurs de réflectivité théorique entre 35 et 50 %, si elles sont basées sur l'aluminium (Al).

Nous avons choisi la combinaison C/Si pour l'étude expérimentale. Cette combinaison, selon nous, est la plus prometteuse, dans la région spectrale 25-33 nm, en regard de divers critères qui doivent être satisfaits afin d'obtenir une meilleure performance de miroirs. Nos résultats montrent que cette combinaison sera également utile dans la région spectrale 33-40 nm.

Nous avons réalisé diverses études pour la caractérisation de la combinaison C/Si. Cela inclut la fabrication des miroirs, les mesures de réflectivité à incidence normale, la caractérisation par la technique de diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD), la caractérisation par la microscopie électronique à transmission (TEM), la caractérisation de la résistance des miroirs aux températures élevées par la diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD) et par la microscopie électronique à transmission (TEM) et la caractérisation des multicouches par AES et ESCA.

Les mesures de réflectivité à incidence normale ont montré que la réflectivité à incidence normale des miroirs C/Si peut atteindre la valeur de 25 % dans la région spectrale 25-33 nm et la valeur de 23 % dans la région spectrale 33-40 nm. Nous avons comparé la réflectivité des miroirs C/Si avec celle des miroirs constitués d'une couche unique de platine (Pt). Dans la région spectrale 25-30 nm, les miroirs multicouches C/Si possèdent

une réflectivité plus grande par un facteur 10 que celle des miroirs de platine. Dans la région spectrale 30-40 nm, la valeur de ce facteur diminue mais reste assez élevée pour qu'on puisse toujours considérer l'utilisation des miroirs C/Si comme plus avantageuse que l'utilisation des miroirs basés sur des matériaux élémentaires. Dans la région spectrale 25-40 nm, les valeurs de réflectivité sont les plus grandes obtenues à ce jour.

Les mesures de réflectivité ont été réalisées en utilisant le monochromateur à incidence rasante et la source de décharge. Pour les mesures de réflectivité des miroirs, nous avons été les premiers à utiliser ce type de source de rayonnement. La source a l'avantage d'être peu coûteuse et facile à utiliser. À noter que les mesures de réflectivité sont habituellement effectuées en utilisant le rayonnement du synchrotron.

L'analyse par la microscopie électronique à transmission (TEM) a montré que:

- les couches sont très périodiques et ont des interfaces abruptes et planes;
- une faible inter-diffusion et une asymétrie des interfaces sont toutefois présentes;
- les couches de carbone (C) et de silicium (Si) sont amorphes.

Les résultats fournis par la technique de diffraction des rayons X à incidence rasante (LAXRD) ont confirmé les conclusions tirées à partir de l'analyse par la microscopie électronique à transmission.

La caractérisation de la résistance des miroirs C/Si aux températures élevées par la

microscopie électronique à transmission (TEM) et la diffraction des rayons X aux grands angles (HAXRD) a montré que:

- le silicium (Si) et le carbone (C), lors du chauffage des miroirs à des températures aussi élevées que 600°C, ne se cristallisent pas;

- la formation du carbure de silicium (SiC) aux interfaces des couches n'a pas été observée;

- la structure multicouche a une grande résistance à des températures aussi élevées que 600°C;

- les interfaces de couches lors du traitement de température demeurent planes. L'interdiffusion des couches ainsi que l'asymétrie des interfaces deviennent toutefois de plus en plus élevées;

- les couches de multicouches, lors du traitement jusqu'à des températures aussi élevées que 600°C, demeurent amorphes.

L'étude des miroirs C/Si par AES et ESCA a montré que:

- les couches des miroirs sont très périodiques et ont des interfaces abruptes;

- la surface des multicouches C/Si ne contient que du silicium, du carbone, et des contaminants, soit de l'oxygène et de l'argon ¹. La contamination par l'oxygène diminue

¹La contamination par l'argon n'a pas été étudiée.

rapidement vers l'intérieur de la surface. À une profondeur de ~ 1.5 nm, les multicouche ne contiennent que $\sim 0.3\%$ d'oxygène.

Nous avons observé la présence du carbure de silicium (SiC) aux interfaces des couche à la phase amorphe. Cependant, nous avons conclu que sa présence est essentiellement due au mixage ionique produit par le faisceau d'ions utilisé par les techniques AES et ESCA.

Appendice 1

Logiciel OMREFL1

Ce logiciel (écrit en FORTRAN) calcule les épaisseurs des couches du miroir avec lesquelles la réflectivité du miroir est théoriquement la plus grande. Le logiciel calcule la valeur optimale de l'épaisseur de la couche absorbante $dd2$ pour diverses valeurs de la période $dperiod$. Ensuite il compare ces valeurs entre elles pour trouver celle qui donne la plus grande réflectivité $refl$.

```
c *****donnees importantes *****
c   alfaX -> indices de refraction.
c   betaX -> indices d'absorption.
c   nX = alfaX+ i betaX -> constantes optiques (valeurs complexes).
c   RXX -> coefficients de Fresnel.
c   a -> nombre de periodes.
c   dd2 -> epaisseur optimisee de la couche absorbante.
c   dd1 -> epaisseur optimisee de la couche nonabsorbante.
c   dperiod -> valeur de la periode.
c   liambda -> longueur d'onde.
```

```

c   refl -> reflectivite optimisee.
c   "nonabsorbant", "absorbant" -> fichiers des constantes optiques
c   (3 col. - liambda | alfaX | betaX) pour le materiau nonabsorbant
c   et absorbant respectivement.
c   "resultats" -> fichier des resultats
c   (3 col. - liambda | refl | dd2 | dd1 ).
c   *****

real alfa0, beta0, Ref1, Ref2, Ref, d1, d2, delta1
real delta2, alfa, c1, c2, dperiod, edge
complex n0, n1, n2, n3, R12, R21, R01, R13, R23, R02
complex R, comp1, comp2, const1, const2
Integer a, i, item
parameter(pi=3.1415926535897932385)
parameter(dim=100)
real alfa1(dim), beta1(dim), alfa2(dim), beta2(dim)
real alfa3(dim), beta3(dim), refl(dim), liambda(dim),
dd2(dim), dd1(dim)

alfa=0.
alfa=alfa*Pi/180
a=80
open (unit=10, file='nonabsorbant', status='old')
open (unit=11, file='absorbant', status='old')
open (unit=12, file='resultats', status='new')

do 100 item=1,65
read (10,*) liambda(item), alfa1(item), beta1(item)
read (11,*) liambda(item), alfa2(item), beta2(item)
alfa3(item)=alfa1(item)
beta3(item)=beta1(item)

```

```

print*, 'Longueur d'onde:', liambda(item), ' nm'
Ref1=0
Ref2=0
Ref=0
alfa0=1.0
beta0=0.0
n0=cmplx(alfa0,beta0)
n1=cmplx(alfa1(item), beta1(item))
n2=cmplx(alfa2(item), beta2(item))
n3=cmplx(alfa3(item), beta3(item))
dperiod=liambda(item)/cos(alfa) +1.
print*, 'Periode choisie: ', dperiod
5 d2=dperiod/(4*alfa2(item))
d1=(dperiod/2-alfa2(item)*d2)/alfa1(item)
8 const1=4*Pi*d1*sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))/liambda(item)
const2=4*Pi*d2*sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))/liambda(item)
c1=exp(-Imag(const1))
delta1=Real(const1)
c2=exp(-Imag(const2))
delta2=Real(const2)
comp1=cmplx(cos(delta1), sin(delta1))
comp2=cmplx(cos(delta2), sin(delta2))

R12=(sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))-
sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))/
(sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))+
sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))

R21=-R12

```

```

R23=(sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))-
sqrt(n3*n3-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))/
(sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))+
sqrt(n3*n3-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))

R13=(sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))-
sqrt(n3*n3-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))/
(sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))+
sqrt(n3*n3-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))

R01=(sqrt(n0*n0-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))-
sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))/
(sqrt(n0*n0-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))+
sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))

R02=(sqrt(n0*n0-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))-
sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))/
(sqrt(n0*n0-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))+
sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa)))

R=R23
do 10 i=1,a
R=(R12+R*comp2*c2)/(1+R12*R*comp2*c2)
R=(R21+R*comp1*c1)/(1+R21*R*comp1*c1)
10 continue
R=(R02+R*comp2*c2)/(1+R02*R*comp2*c2)
Ref=(Real(R))*(Real(R))+(Imag(R))*(Imag(R))
Ref1=Ref

print*, 'Optimisation de "d2" pour la valeur de "dperiod"...'

```

```
20  d2=d2-0.01
    d1=(dperiod/2-alfa2(item)*d2)/alfa1(item)
    const1=4*Pi*d1*sqrt(n1*n1-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))/liambda(item)
    const2=4*Pi*d2*sqrt(n2*n2-n0*n0*sin(alfa)*sin(alfa))/liambda(item)
    c1=exp(-Imag(const1))
    delta1=Real(const1)
    c2=exp(-Imag(const2))
    delta2=Real(const2)
    comp1=cplx(cos(delta1),sin(delta1))
    comp2=cplx(cos(delta2),sin(delta2))

    R=R23
    do 30 i=1,a
    R=(R12+R*comp2*c2)/(1+R12*R*comp2*c2)
    R=(R21+R*comp1*c1)/(1+R21*R*comp1*c1)
30  continue
    R=(R02+R*comp2*c2)/(1+R02*R*comp2*c2)
    Ref=(Real(R))*(Real(R))+(Imag(R))*(Imag(R))

    if (Ref.GT.Ref1) then
    Ref1=Ref
    Go To 20
    else
    print*, 'Fin.'
    print*, 'Cela donne R=',Ref1
    print*, 'd2=',d2,' d1=',d1
    print*

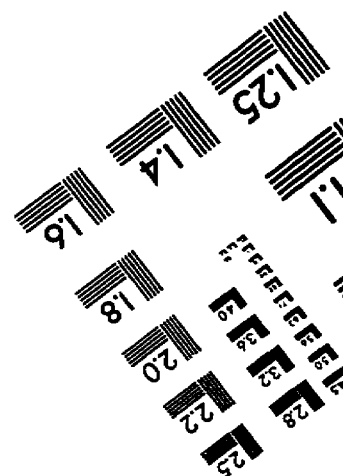
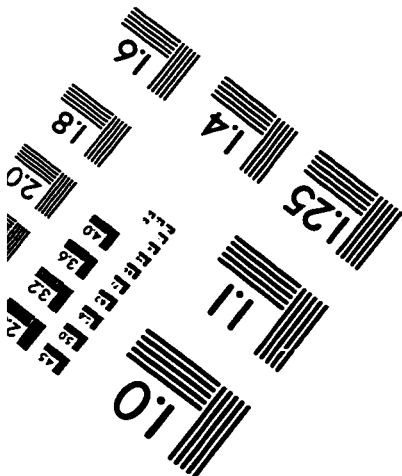
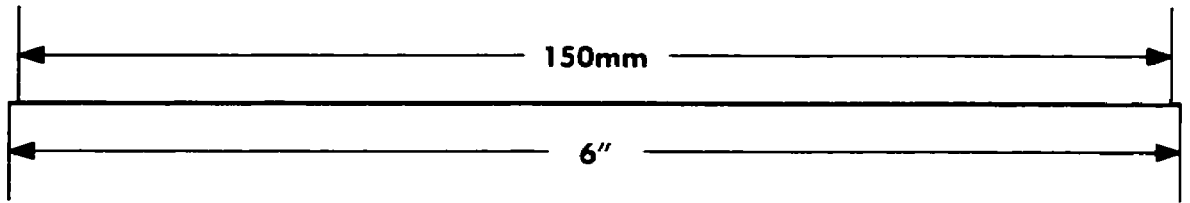
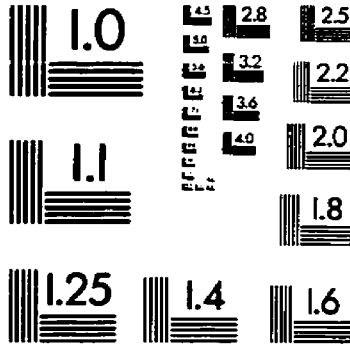
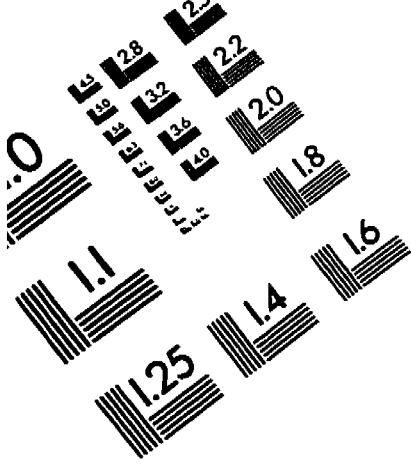
    if (Ref1.GT.Ref2) then
    Ref2=Ref1
    print*, 'Diminuation de dperiod'
```

```
dperiod=dperiod-0.01
Go to 5
else
print*, 'Reflectivite optimisee pour'
print*, " lambda=", liambda(item), " nm is R=', Ref2

refl(item)=Ref2
dd2(item)=d2
dd1(item)=d1
endif
endif
100 continue

do 110 count=1,65
print*, liambda(count), refl(count), dd2(count), dd1(count)
write(12,*) liambda(count), refl(count), dd2(count), dd1(count)
110 continue
stop
end
```

TEST TARGET (QA-3)



APPLIED IMAGE, Inc
1653 East Main Street
Rochester, NY 14609 USA
Phone: 716/482-0300
Fax: 716/288-5989

© 1993, Applied Image, Inc., All Rights Reserved