THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS 6

SPECIALITE :

OPTIQUE ET PHOTONIQUE

PRESENTEE PAR MLLE DECANINI DOMINIQUE

POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 6

SUJET DE LA THESE : CONCEPTION ET REALISATION DE MIROIRS MONOCHROMATEURS-REFLECTEURS POUR LE RAYONNEMENT X-UV.

SOUTENUE LE 17 DECEMBRE 1985

DEVANT LE JURY COMPOSE DE :

M. F. ABELES	PRESIDENT
M. C. IMBERT	EXAMINATEUR
M. P. JAEGLE	"
M. P. LEMAIRE	"
M. A. MALHERBE	"
M. J.P. CHAUVINEAU	"

DECANINI Dominique

Conception et réalisation de miroirs monochromateurs-réflecteurs pour le rayonnement X-UV.

Résumé : Des empilements périodiques de couches minces alternées respectivement absorbantes et transparentes pour le rayonnement X-UV permettent de réaliser, pour ce domaine de longueurs d'onde (10 nm $\lesssim \lambda \lesssim$ 125 nm), des miroirs monochromateurs-réflecteurs. De telles multicouches rendent possible la réalisation d'optiques X-UV travaillant en réflection et en incidence quasi-normale. Après une étude des matériaux par spectroscopie AUGER et par mesure de résistance pour évaluer la compatibilité des couples de matériaux en couches très minces, les miroirs interférentiels sont réalisés par évaporation sous vide en contrôlant les épaisseurs par réflectométrie de rayons X mous (λ_c = 4,47 nm ou 6,78 nm) pendant le dépôt, puis caractérisés (période, densité, rugosité) par réflection de rayons X (λ_c = 0,154 nm) rasants. Les miroirs à multicouches réalisés au cours de ce travail sont destinés à l'astrophysique (télescope pour λ_u = 30,4 nm) et au diagnostic des plasmas créés par laser (λ_u = 13 nm, 15,5 nm, 18,7 nm et 121,6 nm).

Mots clés : couches minces, multicouches, optique X-UV, réflectométrie X mous, réflexion X rasants, spectroscopie AUGER.

Monsieur le Professeur ABELES m'a fait l'honneur d'accepter de présider mon jury de thèse; je le prie de bien vouloir trouver ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je remercie Monsieur le Professeur IMBERT de m'avoir accue illie à l'INSTITUT d'OPTIQUE et d'accepter de participer à la Commission d'Examen de cette thèse.

Je remercie très vivement Monsieur CHAUVINEAU qui a dirigé ces travaux et m'a apporté en toutes circonstances une aide bienveillante et efficace.

Je souhaite exprimer aussi ma reconnaissance à Messieurs JAEGLE, LEMAIRE et MALHERBE qui m'ont fait l'honneur d'être membres du jury.

Je tiens à dire combien j'ai apprécié la collaboration amicale et efficace des Chercheurs, des Ingénieurs et des Techniciens du Laboratoire de Couches Minces de Monsieur CHAUVINEAU. J'ai beaucoup appris de Madame VALIERGUE, qui a réalisé de nombreuses multicouches,et de Madame MORILHAT qui m'a aidé à résoudre les difficultées matérielles. J'ai bénéficié des connaissances de Messieurs CORNO,NEVOT et PARDO en ce qui concerne les études par réflexion de rayons X rasants. Je les remercie tous très chaleureusement.

Enfin je tiens à exprimer mes remerciements à Mesdames LAINE, DELMOTTE et DUFOUR sans qui cette thèse n'aurait jamais été dactylographiée ni reproduite.

S O M M A I R E

INTRODUCTION 7

I - CONCEPTION DES MULTICOUCHES 13

1 - Principe des multicouches - loi de BRAGG..... 15

2 - Calcul de l'indice des matériaux 17

3 - Loi de BRAGG corrigée..... 19

4 - Calcul de la réflectivité d'une multicouche..... 21

4 - 1 Théorie matricielle 21

4 - 2 Théorie des impédances 23

5 - Choix des matériaux 26

5 - 1 Choix des indices 26

5 - 2 Incertitudes sur les indices 28

6 - Optimisation des multicouches 30

6 - 1 Epaisseurs relatives des matériaux dans la multicouche 30

a) Optimisation de la réflectivité d'une multicouche périodique et infinie..... 30

b) Optimisation de la réflectivité d'une multicouche périodique et finie..... 31

6 - 2 Nombre de couches de l'empilement..... 33

II - ETUDE DE LA FAISABILITE DES MULTICOUCHES 37

1 - Principe de la spectroscopie AUGER (S.E.A.)..... 39

2 - Dispositif expérimental 40

2 - 1 Spectromètre AUGER 40

2 - 2 Enceinte à vide 42

.../...

3 - Applications de la spectroscopie AUGER..... 44

3 - 1 Composition de la couche 44

a) Identification des éléments..... 44

b) Etat chimique des éléments 46

3 - 2 Etude des interfaces..... 49

3 - 3 Croissance des couches 50

4 - Mesures de résistance 54

4 - 1 Montage expérimental 54

4 - 2 Applications de la mesure de résistance 55

III - FABRICATION DE MULTICOUCHES AVEC CONTROLE DE L'EPAISSEUR PAR REFLECTOMETRIE IN SITU 57

1 - Principe de la méthode de contrôle de l'épaisseur par réflectométrie in situ..... 59

1 - 1 Couche unique 59

a) Couche non absorbante 61

b) Couche absorbante 61

1 - 2 Multicouche 63

2 - Montage expérimental 64

2 - 1 Enceinte à vide 64

2 - 2 Système de pompage 65

2 - 3 Canon évaporant 66

2 - 4 Système de contrôle 67

a) La source de rayons X mous 67

b) Le détecteur 68

c) Précision de la méthode 69

2 - 5 Support des multicouches 70

.../...

3 - Avantages et inconvénients de la méthode 70

3 - 1 Avantages de la méthode 70

3 - 2 Inconvénients de la méthode 71

IV - CARACTERISATION DES MULTICOUCHES APRES LA FABRICATION 73

1 - Goniomètre de précision 75

1 - 1 Principe de la mesure 75

1 - 2 Dispositif expérimental 78

1 - 3 Analyse des résultats 80

2 - Caractérisation directe des multicouches en X-UV..... 82

V - MIROIRS INTERFERENTIELS POUR λ_u = 30,4 nm 85

1 - Application à l'astrophysique 87

2 - Asphérisation des supports des multicouches..... 88

2 - 1 Choix du matériau pour réaliser la couche d'asphérisation..... 88

2 - 2 Test de la couche d'asphérisation..... 93

a) Principe du test 93

b) Analyse des résultats obtenus pour λ_c *= 0,154 nm* 94

c) Résistance de la multicouche au rayonnement solaire 99

2 - 3 Réalisation des couches d'asphérisation 100

a) Dispositif expérimental..... 100

b) Détermination de la forme des caches..... 101

b - 1 Miroir primaire 101

b - 2 Miroir secondaire 101

2 - 4 Contrôle des couches d'asphérisation 104

.../...

3 - Etude théorique des multicouches 107

3 - 1 Réflectivité des empilements parfaits..... 107

3 - 2 Réflectivité des multicouches contaminées..... 111

3 - 3 Influence de la dispersion des épaisseurs sur la réflectivité des multicouches..... 113

3 - 4 Influence de la rugosité sur la réflectivité..... 117

3 - 5 Influence de l'incidence sur la réflectivité des multicouches 119

4 - Caractérisation des empilements 121

4 - 1 Caractérisation des matériaux 121

a) Silicium 121

b) Tungstène-rhénium..... 123

b - 1 Composition..... 123

b - 2 Contamination 125

c) Niobium..... 130

4 - 2 Stabilité des empilements 133

a) Empilement WRe/Si 133

b) Empilement Nb/Si 133

5 - Choix des matériaux de la multicouche 135

5 - 1 Contrôle des multicouches..... 135

5 - 2 Tests des multicouches en X-UV..... 143

a) Réflectivité des empilements..... 143

a - 1 Multicouche Nb/Si 143

a - 2 Multicouche Mo/Si 145

b) Résistance des multicouches aux rayonnements 145

b - 1 Résistance au rayonnement solaire 145

b - 2 Résistance au rayonnement X 146

.../...

VI - MULTICOUCHES DESTINEES A L'ETUDE DES PLASMAS CREES PAR LASER (λ_u = 13 nm, 15,5 nm, 18,7 nm) 149

1 - Application des multicouches à l'étude des plasmas 151

2 - Etude théorique des multicouches 153

2 - 1 Choix des matériaux 153

2 - 2 Calcul des paramètres des multicouches 156

a) Multicouches optimisées 156

b) Contraintes expérimentales 159

3 - Multicouches réalisées 161

3 - 1 Multicouches réalisées pour une incidence de 45° 161

3 - 2 Multicouches réalisées pour l'incidence normale 166

4 - Caractérisation des multicouches avec λ_c = 0,154 nm 167

4 - 1 Multicouche tungstène-rhénium/silicium 167

4 - 2 Multicouche niobium/silicium 172

4 - 3 Multicouche niobium/bore 176

5 - Images d'un plasma créé par laser 180

VII - ETUDE PRELIMINAIRE A LA REALISATION D'UN MICROSCOPE DE SCHWARZSCHILD (λ_u = 121,6 nm) 183

1 - Le microscope de SCHWARZSCHILD 185

2 - Réflectivité théorique des multicouches pour λ_u = 121,6 nm 186

2 - 1 Elément transparent des multicouches 186

2 - 2 Largeur à mi-hauteur des pics de réflectivité 188

2 - 3 Influence du corps absorbant sur la réflectivité 188

3 - Caractérisation des matériaux 191

3 - 1 Le magnésium 191

.../...

a) Etude par spectroscopie AUGER 191

b) Etude par mesure de résistance..... 192

b - 1 Recristallisation du magnésium 192

b - 2 Oxydation du magnésium 194

3 - 2 Le fluorure de magnésium (MgF_2) 194

4 - Stabilité des empilements 197

4 - 1 Stabilité des empilements Mg/X 197

4 - 2 Stabilité des empilements MgF_2/X 200

CONCLUSION 203

BIBLIOGRAPHIE 211

INTRODUCTION

INTRODUCTION

Depuis quelques années, on observe une renaissance de l'intérêt porté au domaine des rayons X mous et de l'ultraviolet lointain (λ = 0,3 nm → λ = 30 nm). Les astrophysiciens, intéressés par l'obtention de cartes de température du soleil et l'observation de l'émission X des étoiles, ont été les premiers à développer, pour les rayons X, des systèmes optiques utilisant des combinaisons de miroirs en incidence rasante (1960). Par la suite (1970) de nouvelles sources de rayons X sont apparues : les plasmas créés par laser ou par décharge électrique, les générateurs synchrotrons et les plasmas à confinement magnétique pour la fusion nucléaire. Ces nouvelles sources de rayonnement ont créé la demande d'optiques appropriées, soit pour l'étude de la source elle-même, soit pour l'utilisation du rayonnement.

Deux types d'optiques à rayons X existent ou sont en voie de développement, en dehors des optiques diffractives à zones de FRESNEL.

- Les systèmes optiques travaillant en incidence rasante (optiques toriques, optiques de WOLTER ou de KIRKPATRICK-BAEZ) sont appliqués aux rayons X mous et durs. L'incidence rasante permet de réduire la qualité nécessaire pour les surfaces, tout en augmentant leur pouvoir réflecteur pour les rayons X.

- Les systèmes optiques à combinaison de miroirs travaillant en incidence quasi-normale semblent accessibles aux rayons X mous compte tenu de l'état actuel des techniques de surfaçage ; ils permettent d'obtenir des aberrations plus faibles. Dans ce travail, nous nous intéressons à ce dernier type d'optiques, dans lequel l'incidence est généralement inférieure ou égale à 45°. Le pouvoir réflecteur des miroirs doit alors être augmenté par dépôt de multicouches périodiques dans une direction. En effet, l'indice de tous les matériaux est proche de 1 dans le domaine X-UV. En conséquence la réflectivité d'un dioptre est très faible en incidence normale ; elle décroît approximativement comme λ^4 lorsque la longueur d'onde diminue. Cependant des calculs confirmés par des résultats expérimentaux obtenus

.../...

ces dernières années ont montré que des empilements de couches minces alternées de deux matériaux convenablement choisis permettaient d'augmenter considérablement le pouvoir réflecteur d'un miroir pour une longueur d'onde et une incidence déterminées par les caractéristiques des multicouches. A. ROSENBLUTH (49) a montré que l'on pourrait obtenir des réflectivités théoriques maximales comprises entre 0,4 et 0,8 en incidence normale pour les longueurs d'onde de 0,6 à 12,4 nm, en optimisant le choix des matériaux et les paramètres des multicouches. Ces calculs concernent des empilements possèdant une structure idéale, Or l'épaisseur des couches est une fraction de la longueur d'onde d'utilisation, c'est-à-dire qu'en général elle n'est pas très grande devant les distances interatomiques moyennes dans un solide. On conçoit qu'à cette échelle la forme réelle des surfaces et interfaces puisse s'écarter du modèle plan parfait, en considérant notamment qu'un "bon poli" optique correspond à une rugosité de 0,5 à 1 nm en valeur quadratique moyenne. En second plan, lors du processus de fabrication des couches minces, les matériaux subissent une évaporation et une condensation en présence d'une atmosphère résiduelle dont certaines composantes, - oxygène, vapeur d'eau - peuvent modifier la nature du dépôt, et par conséquent son indice optique. Enfin, des phénomènes d'interdiffusion peuvent également altérer la structure des empilements. Pour ces diverses raisons, les propriétés optiques des multicouches effectivement réalisées seront généralement différentes de celles du modèle idéal. D'ores-et-déjà l'expérience a permis de sélectionner quelques couples de matériaux - tels le carbone/tungstène, ou le carbone/tungstène-rhénium - qui fournissent des empilements de bonne qualité avec des réflectivités intéressantes dans certains domaines du rayonnement X-UV. L'objet de notre travail est d'expérimenter de nouveaux couples de matériaux susceptibles de constituer de bons réflecteurs pour des longueurs d'onde comprises entre 13 et 35 nm, afin d'aboutir si possible à des réalisations pratiques d'optiques à miroirs pour des applications en astrophysique ou en diagnostic

.../...

des plasmas créés par laser. Pour cette dernière application nous étudions également les conditions de réalisation et les performances d'empilements réflecteurs - monochromateurs pour la longueur d'onde de 121,6 nm (raie LYMAN α de l'hydrogène).

La réalisation de miroirs interférentiels comporte plusieurs étapes :

- Le calcul initial des paramètres des multicouches (période, épaisseurs individuelles des matériaux, réflectivité) permet de comparer théoriquement les résultats obtenus avec plusieurs couples de matériaux à partir des indices tabulés par B.L. HENKE (7).

- La pureté des matériaux déposés et la structure des couches sont des facteurs déterminants pour la réflectivité des empilements. Nous étudierons la faisabilité des multicouches par spectroscopie d'électrons AUGER et par mesure de résistance électrique "in situ" afin de déterminer la composition des couches (contamination par les gaz résiduels de l'enceinte), la compatibilité des matériaux (diffusion, formation de composés) pour définir les meilleures conditions d'évaporation (température du substrat, atmosphère résiduelle, vitesse de dépôt).

- L'étape suivante consiste à réaliser les multicouches en contrôlant les épaisseurs de manière précise ; à cette fin, nous utiliserons la réflectométrie "in situ" de rayons X mous (λ_c = 4,47 nm ou λ_c = 6,78 nm) pendant le dépôt.

- La caractérisation des multicouches après la fabrication sera faite par réflexion de rayons X rasants grâce à un goniomètre de précision qui utilise la raie K_α du cuivre (λ_c = 0,154 nm). L'analyse de la courbe de réflectivité en fonction de l'angle d'attaque permet de déterminer l'épaisseur moyenne d'une bicouche dans les empilements périodiques, d'évaluer les épaisseurs individuelles des couches de l'empilement et les rugosités interfaciales, qui sont des paramètres importants pour la qualité des miroirs interférentiels.

L'ensemble de ces mesures, réalisables dans notre laboratoire, pendant ou après la fabrication des empilements devra nous permettre d'élaborer un modèle plus réaliste des multicouches, et d'estimer leurs performances en X-UV, à l'aide

.../...

des programmes de calcul de réflectivité qui ont été développés à cet effet. La dernière phase qui consiste à mesurer effectivement la réflectivité en fonction de la longueur d'onde, de l'angle d'incidence et de la polarisation du rayonnement X-UV devra se faire en utilisant le rayonnement synchrotron du LURE (Laboratoire d'Utilisation du Rayonnement Electro-magnétique), et ne sera appliquée qu'à quelques échantillons bien caractérisés.

Compte-tenu de ses applications potentielles, ce travail a été effectué en collaboration avec plusieurs laboratoires. Une étude en vue de réaliser un télescope de RITCHEY-CHRETIEN pour la longueur d'onde de 30,4 nm est entreprise avec le Laboratoire de Physique Stellaire et Planétaire du C.N.R.S. à Verrière-le-Buisson. Nous avons fabriqué des monochromateurs-réflecteurs pour le Laboratoire de Physique des Milieux Ionisés (Ecole Polytechnique-Palaiseau) afin de permettre l'étude des plasmas créés par laser (λ_u = 13 nm, 15,5 nm, 18,7 nm). Enfin la réalisation de plusieurs microscopes de SCHWARZSCHILD est prévue en collaboration avec le L.P.M.I. déjà cité, le Laboratoire de Physique des Gaz et des plasmas d'Orsay et le LURE, pour des longueurs d'onde de 121,6, 30 et 15 nm, et éventuellement plus courtes, en fonction des résultats obtenus avec les premiers systèmes. Ces diverses réalisations devront permettre d'évaluer les possibilités actuelles des optiques X-UV fonctionnant en incidence non rasante, compte-tenu de l'état des techniques de surfaçage et des performances réelles des traitements multicouches.

CHAPITRE I

CONCEPTION DES MULTICOUCHES.

I - CONCEPTION DES MULTICOUCHES

Pour concevoir un miroir interférentiel il faut connaître au départ la longueur d'onde d'utilisation et l'angle d'incidence du rayonnement. Ces deux données étant fixées, il faut déterminer les paramètres de la multicouche, c'est-à-dire les matériaux qui la composeront et les épaisseurs des couches élémentaires, pour calculer la réflectivité que l'on peut en attendre.

1 - Principe des multicouches - loi de BRAGG :

Nous ne pouvons pas utiliser l'empilement "quart d'onde" employé pour fabriquer les filtres interférentiels dans le visible, cette structure nécessite l'emploi de matériaux non absorbants qui n'existent pas dans le domaine des X mous et de l'U.V. lointain.

Pour les rayons X ($\lambda \leq 0{,}3$ nm), les cristaux naturels ou synthétiques constituent d'excellents réflecteurs-monochromateurs lorsque la condition de BRAGG est satisfaite :

$$2\, d_{hkl} \sin \theta_n = n\lambda \qquad (1.1)$$

dans laquelle d_{hkl} est la distance interréticulaire de la famille des plans {hkl} et n l'ordre de diffraction. L'absorption est faible et le nombre de plans atomiques qui contribuent à la diffraction peut être très grand, d'autant plus que l'onde stationnaire, qui résulte de l'interférence entre les faisceaux incidents et réfléchis, a ses noeuds en coïncidence avec les plans diffractants (effet Borrmann).

Dans le cas des rayons X-UV, par analogie avec le phénomène de diffraction décrit ci-dessus, on peut concevoir un milieu statifié, périodique dans une direction, formé d'une alternance de couches de deux matériaux respectivement absorbant et transparent. Les strates absorbantes seront l'analogue des plans réflecteurs des cristaux.

.../...

La période doit être telle que les réflexions spéculaires partielles sur les différentes strates se retrouvent en phase à la sortie de l'empilement pour l'angle et la longueur d'onde d'utilisation.

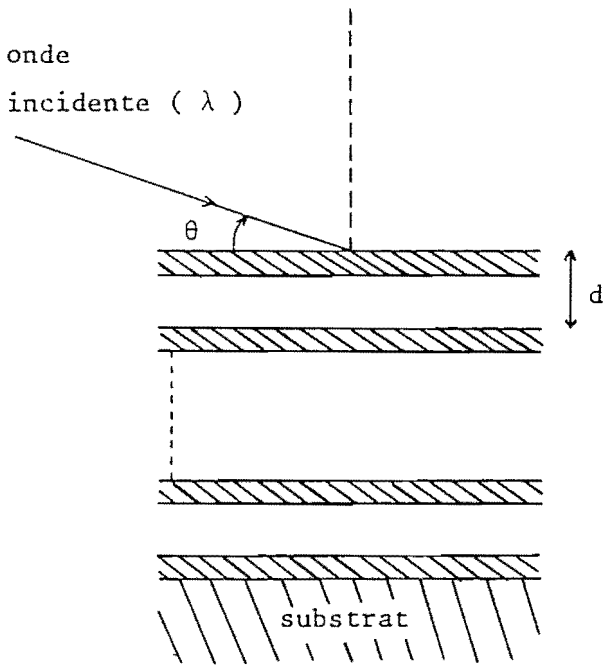


Fig. 1 : "pseudo cristal" de BRAGG utilisé comme réflecteur pour le rayonnement X-UV.

\\\\\\ matériau lourd

matériau léger

En fait cette description du principe de fonctionnement des multicouches est approximative, car il n'existe pas de milieu parfaitement transparent en X-UV. E. SPILLER (1) a montré que dans un empilement optimisé pour obtenir une réflectivité maximale avec un nombre de couches donné, l'épaisseur relative des deux matériaux variait en fonction de la profondeur. On peut également obtenir un pouvoir réflecteur important en alternant deux matériaux relativement transparents, mais dont les parties réelles des indices sont assez différentes (2) ; un tel empilement permet d'obtenir une "bande passante" plus étroite, du fait de la forte pénétration du rayonnement dans la multicouche.

Néanmoins, dans la pratique la plupart des empilements réalisés seront constitués d'un matériau assez absorbant, dit "lourd" et d' un matériau "léger", plus transparent pour la longueur d' onde d'utilisation, ce qui permettra d'assimiler la multicouche à un "pseudo cristal" de BRAGG.

2 - Calcul de l'indice des matériaux :

L'interaction d'une onde électromagnétique avec la matière peut être décrite macroscopiquement à l'aide de l'indice complexe du milieu qui dépend de la longueur d'onde λ du rayonnement incident.

$$\tilde{n}(\lambda) = n(\lambda) - ik(\lambda) \qquad (1.2)$$

La partie réelle $n(\lambda)$ de cet indice représente la réfraction du milieu. La partie imaginaire $k(\lambda)$ correspond à l'absorption.

Le coefficient d'absorption linéaire défini par la loi de BEER-LAMBERT ($I = I_o\, e^{-\mu x}$) a pour expression :

$$\mu = \frac{4\pi k}{\lambda} \qquad (1.3)$$

.../...

Dans le domaine des rayons X-UV qui nous intéresse, $n(\lambda)$ est voisin de 1 et inférieur à 1. La réfraction est très faible, les fortes réflectivités sont obtenues pour des angles très rasants. On a l'habitude d'écrire l'indice sous la forme :

$$\tilde{n} = 1 - \delta - i\beta \qquad (1.4)$$

δ est appelé le décrément, il est très petit et positif (de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-5}).

β joue le même rôle que k dans la définition précédente.

L'indice $\tilde{n}$ ne peut pas être exprimé en fonction de λ à l'aide d'une formule analytique. Il est nécessaire d'utiliser une description microscopique de l'interaction des atomes avec l'onde électromangétique incidente. L'atome est alors assimilé à un ensemble d'oscillateurs dipolaires, il est caractérisé par un facteur de diffusion atomique $f_i(\lambda)$ que l'on peut calculer.

Pour un milieu homogène, isotrope et absorbant, l'expression classique de DRUDE-LORENTZ, nous donne la formule suivante pour l'indice :

$$\tilde{n} = 1 - \frac{r_o}{2\pi} \lambda^2 \sum_i \tilde{f}_i(\lambda)\, n_i \qquad (1.5)$$

n_i : nombre d'atomes diffuseurs de type i par unité de volume

$f_i(\lambda)$: facteur de diffusion de l'atome i

r_o : rayon classique de l'électron, $r_o = 2{,}8178.10^{-15}$ m.

En décomposant $f_i(\lambda)$ en partie réelle $f_{i1}(\lambda)$ et en partie imaginaire $f_{i2}(\lambda)$, on peut exprimer δ et β.

$$\delta = \frac{r_o}{2\pi} \lambda^2 \sum_i n_i\, f_{i1}(\lambda) \qquad (1.6)$$

.../...

$$\beta = \frac{r_o}{2\pi} \lambda^2 \sum_i n_i f_{i2}(\lambda) \qquad (1.7)$$

3 - Loi de BRAGG corrigée :

Comme nous l'avons vu au §1, la période des multicouches est calculée à partir de la loi de BRAGG exprimée sous la forme la plus simple : $2 d \sin\theta = N\lambda$ mais cette relation ne tient pas compte de l'indice des matériaux. d est l'épaisseur optique, c'est-à-dire l'épaisseur géométrique multipliée par l'indice de la couche.

Pour introduire la dispersion et l'absorption des strates formant l'empilement, on utilise la loi de SNELL-DESCARTES et on calcule le chemin optique parcouru par l'onde dans la multicouche. On obtient alors la loi de BRAGG corrigée.

$$2 e_L \sqrt{\sin^2\theta - (1-n_L^2)} + 2 e_l \sqrt{\sin^2\theta - (1-n_l^2)} = N\lambda \qquad (1.8)$$

e_L : épaisseur de l'élément absorbant (lourd) dans une période

e_l : " " transparent (léger) " " "

n_L : indice de l'élément lourd

n_l : " " léger.

Dans le cas général, la correction due à l'absorption est négligeable devant celle provenant de la dispersion, on a alors $\beta << \delta$ dans l'expression des indices, même pour le corps lourd qui a le plus fort β et qui est souvent en faible proportion dans la multicouche parrapport au corps léger. Lorsque cette condition est réalisée, on peut ne tenir compte que de la correction de dispersion et en développant la relation (1.8), obtenir une formule simplifiée.

.../...

$$2\ d\ \sin\theta = N\ \lambda \left[\frac{1}{1 - \frac{\delta_L/m + \delta_1/n}{\sin^2\theta}} \right] \qquad (1.9)$$

avec $\frac{1}{m} = \frac{e_L}{d}$ $\qquad \frac{1}{n} = \frac{e_1}{d}$

δ est le décrément et e l'épaisseur. Les indices L et 1 correspondent respectivement aux corps lourd et léger.

Il est nécessaire d'utiliser l'une de ces deux expressions de la loi de BRAGG, la simple formule 2 d sin θ = N λ entraînant une erreur dans le calcul de la période donc un décalage en longueur d'onde non négligeable du pic de réflectivité.

Prenons l'exemple d'une multicouche réalisée avec du niobium et du silicium pour être utilisée en incidence normale (θ=90°) à la longueur d'onde de 18,7 nm.

Pour le premier ordre (N=1) la simple formule de BRAGG donne une période de 9,35 nm. En utilisant l'expression (1.9) avec les décréments suivants :

$\delta_L = 0,1285$

$\delta_1 = 1,6959\ 10^{-2}$

et pour une épaisseur de niobium égale au quart de la période ($m = 4$, $n = \frac{4}{3}$), on arrive à une période de 9,79 nm. En injectant la période de 9,35 nm dans cette même formule, on déduit un décalage de 0,84 nm du pic de réflectivité par rapport à la valeur désirée. Pour des empilements composés de 10 bicouches, ces deux périodes conduisent respectivement à des réflectivités de 17,3 % et 25,8 % pour λ = 18,7 nm.

.../...

4 - Calcul de la réflectivité d'une multicouche :

Depuis une quarantaine d'années l'intérêt porté aux couches minces n'a cessé de croître et les méthodes de calcul des propriétés optiques se sont développées. Les principales méthodes concernant des empilements formés de couches parfaites ont été rassemblées en 1963 par P.H. BERNING (3), il décrit les méthodes basées sur les matrices (4) et les admittances ainsi que des méthodes graphiques utilisant des abaques. Pour les calculs sur ordinateur nous employons la théorie des matrices ainsi que la théorie des impédances et des admittances.

4 - 1 Théorie matricielle :

La théorie matricielle est très employée pour les longueurs d'onde du visible. Pour la gamme d'énergie qui nous intéresse, on introduit des approximations les indices des matériaux étant proches de 1(δ et β petits). Cette méthode consiste, à partir des équations de MAXWELL, à caractériser une couche mince par une matrice 2 x 2. Nous n'utilisons pas la notation d'ABELES permettant d'obtenir le champ magnétique total et le champ électrique total, nous préférons pour des commodités de calcul la notation de B. PARDO donnant le champ électrique transmis et le champ électrique réfléchi.

Pour une couche mince caractérisée par une matrice [M], on a donc :

$$\begin{pmatrix} E_t \\ E_r \end{pmatrix} = [M] \begin{pmatrix} E'_t \\ E'_r \end{pmatrix} \qquad (1.10)$$

avec les notations de la fig. 2

.../...

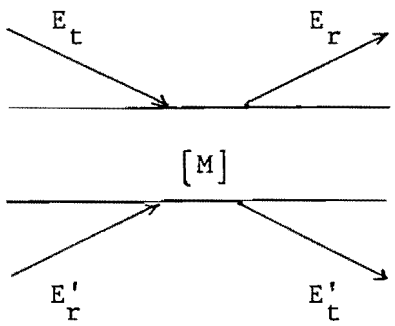


Fig. 2 : Couche mince caractérisée par la matrice [M]

E_t : champ incident sur la couche, $E_t = E_{ot}\, e^{j\vec{k}_t \cdot \vec{r}}$

E_r : champ réfléchi par la couche, $E_r = E_{or}\, e^{j\vec{k}_r \cdot \vec{r}}$

E'_t : champ transmis par la couche, $E'_t = E'_{ot}\, e^{j\vec{k}'_t \cdot \vec{r}}$

E'_r : champ réfléchi par le milieu se trouvant sous la couche, $E'_r = E'_{or}\, e^{j\vec{k}'_r \cdot \vec{r}}$

Dans le cas de la polarisation S, la matrice [M] a la forme suivante :

$$\frac{1}{2}\begin{bmatrix} 1 - \dfrac{k'_{t\perp}}{k_{t\perp}} & 1 - \dfrac{k'_{t\perp}}{k_{t\perp}} \\ 1 - \dfrac{k'_{t\perp}}{k_{t\perp}} & 1 + \dfrac{k'_{t\perp}}{k_{t\perp}} \end{bmatrix}$$

$k'_{t\perp}$ et $k_{t\perp}$ étant les projections normales à l'empilement des vecteurs d'onde associés aux champs E'_t et E_t.

On obtient une expression analogue pour la polarisation P.

Pour un empilement dont chaque couche est caractérisée par une matrice de passage, on a :

.../...

$$\begin{pmatrix} E_t \\ E_r \end{pmatrix} = [M_n]\ [M_{n-1}]\ \ldots\ldots\ [M_1] \begin{pmatrix} E'_t \\ E'_r \end{pmatrix} \qquad (1.11)$$

$[M_1]$ étant la matrice de la couche en contact avec le substrat et $[M_n]$ celle de la couche d'extrême surface.

Dans la composition de nos multicouches il n'entre que deux matériaux, les couches du corps lourd étant caractérisées par une matrice $[M_L]$ et celles du corps léger par une matrice $[M_1]$, pour un empilement de N périodes, le miroir est caractérisé par une matrice de passage globale :

$$[M] = ([M_1]\ [M_L])^N \qquad (1.12)$$

Etant donné que l'on termine toujours l'empilement par une couche de matériau lourd (fig. 1) comme nous le verrons au chapitre III, on a plutôt

$$[M] = [M_L]\ ([M_1]\ [M_L])^N \qquad (1.13)$$

Avec les notations de la fig. 2, $[M]$ est la matrice représentant la multicouche, E_t est le champ incident sur le miroir, E_r est le champ réfléchi, E'_t est le champ transmis et E'_r est nul car il n'y a pas d'onde réfléchie dans le substrat. Le coefficient de réflexion de la multicouche est donné par le rapport :

$$R = \left| \frac{E_r}{E_t} \right|^2 \qquad (1.14)$$

4 - 2 Théorie des impédances :

Cette méthode a été mise en oeuvre à l'Institut d'Optique par B. PARDO pour les calculs sur ordinateur. Dans le cas de la polarisation P, elle consiste à calculer l'impédance et la réflectivité de la (n+1) ième couche à partir de l'impédance et de la réflectivité de la nième couche (5), en partant du substrat.

.../...

L'impédance Z est égale au rapport des composantes tangentielles des champs électrique et magnétique.

$$Z = \frac{E_t}{H_t} \tag{1.15}$$

Les notations sont données sur la fig. 3.

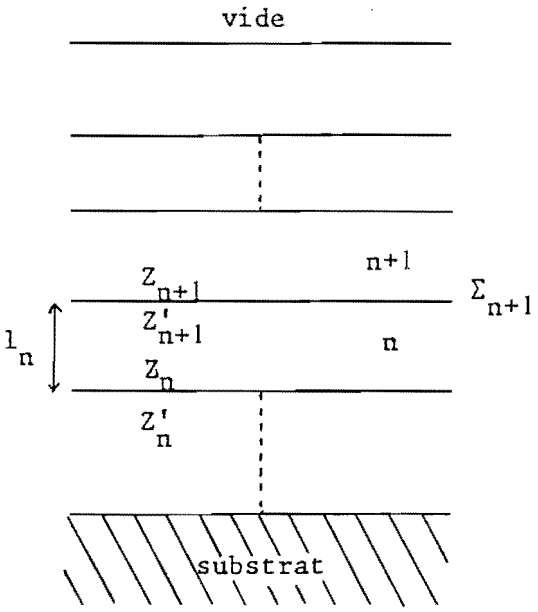


fig. 3

L'impédance au niveau de la surface Σ_{n+1} dans le milieu n+1 a pour expression :

$$Z_{n+1} = \frac{E^i_{n+1} + E^r_{n+1}}{H^i_{n+1} + H^r_{n+1}}$$

Les indices i et r correspondent aux champs incident et réfléchi.

$$Z_{n+1} = z_{n+1} \left[\frac{1 - \alpha_{n+1}}{1 + \alpha_{n+1}} \right] \tag{1.16}$$

avec $z_{n+1} = \frac{E^i_{n+1}}{H^i_{n+1}}$

.../...

et $\alpha = -\frac{E^r}{E^i} = \frac{H^r}{H^i}$ le coefficient de réflectivité.

L'impédance au niveau de la surface Σ_{n+1} dans le milieu n est donnée par :

$$Z'_{n+1} = z'_n \left[\frac{1 - \alpha'_n}{1 + \alpha'_n} \right]$$

La continuité des composantes tangentielles des champs électrique et magnétique au niveau de la surface Σ_{n+1}, nécessite l'égalité de ces deux impédances, d'où :

$$Z_{n+1} = z'_n \left[\frac{1 - \alpha'_n}{1 + \alpha'_n} \right]$$

La couche n étant homogène, on a : $z'_n = z_n$

donc :

$$Z_{n+1} = z_n \left[\frac{1 - \alpha'_n}{1 + \alpha_n} \right]$$

On peut exprimer α'_n à partir de α_n et de l'épaisseur l_n de la couche n :

$$\alpha'_n = \alpha_n \exp \left(\frac{i\, 4\pi\, l_n\, k_z}{\lambda} \right)$$

λ : longueur d'onde associée aux champs électrique et magnétique

k_z: composante du vecteur d'onde perpendiculaire à l'empilement.

On a donc finalement :

$$Z_{n+1} = z_n \left[\frac{e^{-4\pi i k l_n/\lambda} - \alpha_n}{e^{-4\pi i k l_n/\lambda} + \alpha_n} \right] \qquad (1.17)$$

.../...

z étant le rapport des composantes tangentielles des champs E et H incidents :

$$z = \frac{E}{H} \cos r$$

avec

$$\frac{E}{H} = \frac{1}{\tilde{n}} \text{ et } \cos r = \frac{k_z}{\tilde{n}}$$

d'où $z = \frac{k_z}{\tilde{n}^2}$

On procède par itération en partant du substrat pour lequel le coefficient de réflectivité est égal à 0 :

$n = 0 \quad \alpha_o = 0$

z_o

$$n : \begin{cases} \alpha_n = \dfrac{z_n - Z_n}{z_n + Z_n} \\ Z_{n+1} = z_n \left[\dfrac{e^{-4\pi i k_z l_n/\lambda} - \alpha_n}{e^{-4\pi i k_z l_n/\lambda} + \alpha_n} \right] \\ n = n+1 \end{cases}$$

Le vide en extrême surface du miroir sera considéré comme une couche d'épaisseur nulle, car son impédance ne nous intéresse pas mais son coefficient de réflectivité est celui de l'empilement.

On fait un calcul analogue pour la polarisation S en remplaçant l'impédance par l'admittance $Y = \frac{H_t}{E_t}$

5 - Choix des matériaux :

5 - 1 Choix des indices :

La multicouche est composée de deux matériaux, l'un étant plus absorbant que l'autre. L'absorption joue un rôle très important dans le calcul de la réflectivité ;cependant il faut tenir compte également du contraste entre les parties réelles des indices.

.../...

Examinons l'abaque de la fig. 4 établie par B. PARDO et donnant les courbes d'égale réflectivité en fonction de X et Y. Les variables X et Y sont des fonctions de ε_L et ε_1 ($\varepsilon = \varepsilon_1 + i\,\varepsilon_2 = (\tilde{n})^2$) les indices L et 1 correspondants respectivement aux éléments lourd et léger.

$$\varepsilon_1 = 1 - 2\delta + \delta^2 - \beta^2 \simeq 1 - 2\,\delta$$

$$\varepsilon_2 = 2\,\beta(1 - \delta) \simeq 2\,\beta$$

Si nous considérons deux matériaux d'égale absortion, X tend vers 1 et toutes les courbes ont alors pour asymptote la courbe de réflectivité nulle. Dans le cas où le corps lourd est très absorbant par rapport à l'élément léger, X tend vers 0, on peut atteindre une très grande réflectivité mais le rapport $\beta = \frac{e_L}{e_L + e_1}$, qui dépend également de ε_{2L} et ε_{21}, tend vers 0. Cependant, on constate que pour des corps d'absorptions voisines et tels que les parties réelles des indices sont très différentes ($\varepsilon_{11} - \varepsilon_{1L} \simeq 2\,\delta_L - 2\,\delta_1$), on peut obtenir des réflectivités importantes

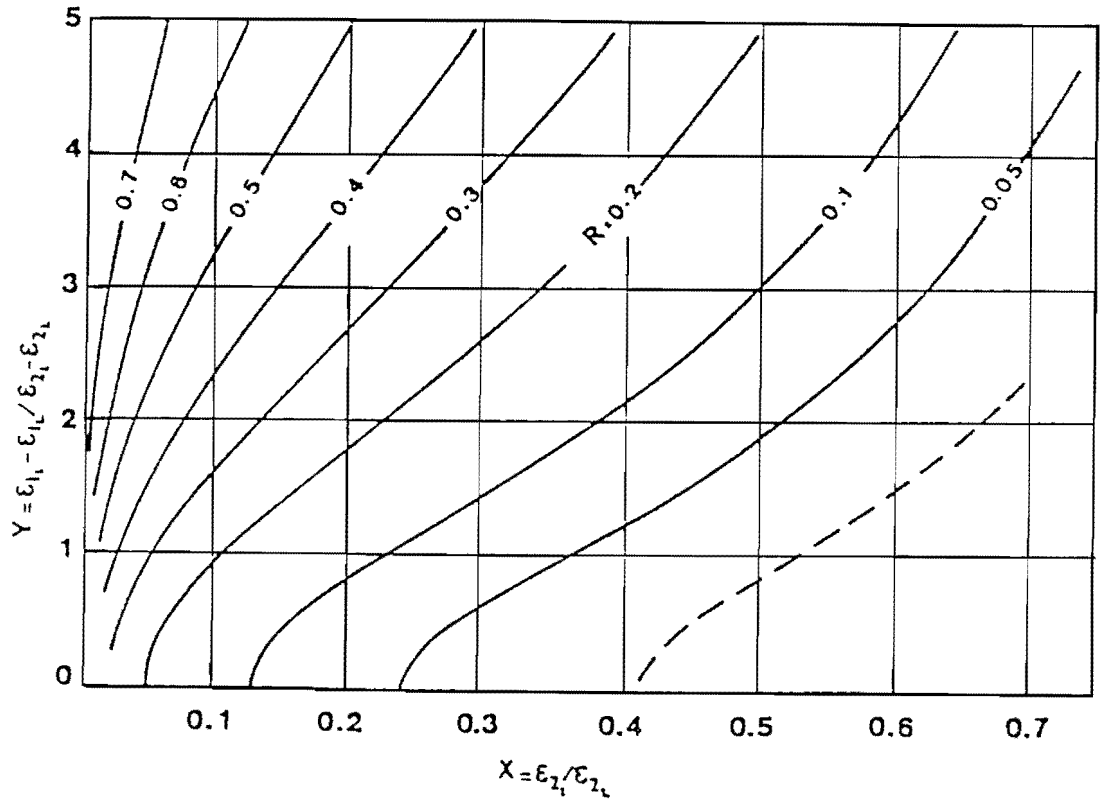


Fig. 4 : D'après B. PARDO

Courbes d'égale réflectivité en fonction de

$\varepsilon_1 = (\tilde{n}_1)^2$ et $\varepsilon_L = (\tilde{n}_L)^2$

5 - 2 Incertitudes sur les indices :

Pour les matériaux massifs, il existe une table établie par B.L. HENKE (6) qui donne les facteurs de diffusion atomique f_1 et f_2 pour tous les éléments et pour des énergies comprises entre 30 et 9900 eV. Cependant, une grande partie de ces valeurs sont obtenues par le calcul et n'ont pas été vérifiées par des mesures.

Les facteurs de diffusion atomique sont calculés à partir des relations de dispersion en utilisant uniquement des données expérimentales de la section efficace d'ionisation $\mu_a(E)$ (7).

$$f_2(E) = \frac{E\,\mu_a(E)}{2\pi\, r_o\, h\, c} \tag{1.18}$$

$$f_1(E) = Z + \frac{1}{\pi\, r_o\, h\, c} \int_o^\infty \frac{\varepsilon^2\, \mu_a(\varepsilon)\; d\,\varepsilon}{E^2 - \varepsilon^2} + \Delta f_r \tag{1.19}$$

avec $\Delta f_r = \frac{5}{3}\,\frac{E_{tot}}{mc^2} - \frac{Z}{2}\,\left(\frac{E}{mc^2}\right)^2$

(correction relativiste)

r_o : rayon classique de l'électron = $2,8178.10^{-15}$ m

c : vitesse de la lumière = $2,997925.10^{8}$ m/s

m : masse de l'électron = $9,1091.10^{-31}$ kg

h : constante de PLANCK = $6,62620.10^{-34}$ J. s

E_{tot} : énergie totale de l'atome

Z : nombre atomique.

Δf_r est négligeable pour les rayons X de basse énergie.

$$\mu_a = \frac{\mu_1}{n}$$

μ_1 est le coefficient d'absorption linéaire et n le nombre d'atomes par unité de volume.

Toutes les données expérimentales concernant les sections efficaces d'ionisation ont été compilées. $f_2(E)$ est directement proportionnel à

.../...

$\mu_a(E)$. Lorsque les données expérimentales sont insuffisantes, f_2 est interpolé où extrapolé à partir des valeurs obtenues pour les éléments voisins. Entre les seuils d'absorption et pour des positions relatives identiques, les valeurs de f_2 varient régulièrement avec le nombre atomique Z. La relation permettant de calculer $f_1(E)$ dépend d'une intégration de μ_a en fonction de l'énergie, ce qui rend sa détermination plus difficile, il est toutefois possible de réduire le domaine d'intégration de 30 ev à 85 keV pour calculer f_1 dans une gamme d'énergie variant de 100 à 2000 eV .

D'autre part, une couche mince n'a pas nécessairement les mêmes propriétés (structure, composition) que le matériau massif de départ. Il sera donc nécessaire de bien caractériser les couches pour tenir compte des variations éventuelles de compacité ou de composition, en particulier pour les éléments susceptibles de se combiner avec certains constituants de l'atmosphère résiduelle de l'enceinte à vide, ou avec l'oxygène de l'air.

Pour ces différentes raisons, tous les indices que nous utilisons doivent être considérés comme approximatifs, surtout au voisinage des seuils d'absorption des éléments, où la variation en fonction de l'énergie est importante. On calcule la période et les épaisseurs relatives des constituants pour chaque couple de matériaux testé, la comparaison des réflectivités permet de déterminer les meilleurs éléments pour réaliser le miroir interférentiel à l'étude.

En définitive, seule l'expérience permettra de sélectionner le meilleur couple pour une longueur d'onde donnée, en fonction des propriétés optiques mais aussi de l'aptitude des matériaux à former des empilements dont la structure se rapproche au mieux de celle d'une multicouche idéale, définie plus haut.

.../...

6 - Optimisation des multicouches :

B. PARDO, D. NACCACHE (8) et T. MEGADEMINI (9) ont dans notre laboratoire étudié en détail les différents problèmes posés par l'optimisation des multicouches.

Nous nous contenterons ici de regarder l'influence des principaux paramètres sur la réflectivité et la sélectivité de nos empilements.

6 - 1 Epaisseurs relatives des matériaux dans la multicouche :

Nous rappelons dans ce paragraphe la condition d'optimisation de l'épaisseur relative des deux corps de la multicouche pour un empilement strictement périodique présentant des interfaces planes.

a) *Optimisation de la réflectivité d'une multicouche périodique et infinie :*

VINOGRADOV et ZELDOVICH (10) ont étudié les conditions d'optimisation d'une multicouche infinie. Pour une utilisation en incidence normale de l'empilement, les valeurs optimales de β et de d sont données par le système suivant :

$$\operatorname{tg}(\pi \beta_{opt}) = \pi \cdot \left(\beta_{opt} + \frac{\operatorname{Im} \varepsilon_1}{\operatorname{Im} (\varepsilon_L - \varepsilon_1)}\right) \qquad (1.20)$$

$$d_{opt} = \frac{\lambda}{2} \left[1 - \frac{\beta}{2} \operatorname{Re} (\varepsilon_L - \varepsilon_1) \left(1 - \frac{\sin 2\pi\beta}{2\pi\beta} \right) - \frac{\operatorname{Re} \delta\varepsilon_1}{2} \right]$$

ε_L : constante diélectrique du matériau lourd

ε_1 : constante diélectrique du matériau léger

$$(\varepsilon_1 = 1 + \delta\varepsilon_1 + \ldots)$$

La réflectivité optimale est alors :

$$R_{opt} = \frac{a^2 (1 + t^2)}{a^2 t^2 + \{1 + [(1 - a^2)(1 + a^2 t^2)]^{1/2}\}^2} \qquad (1.22)$$

.../...

$$\text{avec } t = \frac{\mathrm{Re}\ (\varepsilon_L - \varepsilon_1)}{\mathrm{Im}\ (\varepsilon_L - \varepsilon_1)}$$

$$\text{et} \quad a = \cos\ (\pi\beta_{opt})$$

Le nombre de périodes N nécessaire pour que la réflectivité approche cette valeur est :

$$N = \frac{2 \cdot a}{\left[(1-a^2) \cdot \left\{\left[\mathrm{Re}\ (\varepsilon_L - \varepsilon_1)\right]^2 \cdot a^2 + \left[\mathrm{Im}\ (\varepsilon_L - \varepsilon_1)\right]^2\right\}\right]^{1/2}} \qquad (1.23)$$

Même avec des matériaux peu absorbants et peu réfléchissants, on peut obtenir une bonne réflectivité en optimisant la période d, le rapport β et le nombre de bicouches d'un empilement parfaitement périodique.

VINOGRADOV et ZELDOVICH ont complété leur étude en la généralisant au cas de l'incidence oblique pour les deux polarisations (11). Ils ont montré que le coefficient de réflexion et le coefficient de répartition des épaisseurs β sont les mêmes que dans le cas de l'incidence normale et que seul le nombre nécessaire de couches pour atteindre la réflectivité maximale est modifié par un facteur $\cos^2\theta$ (θ étant l'angle d'incidence).

b) *Optimisation de la réflectivité d'une multicouche périodique finie :*

VINOGRADOV et ZELDOVICH ne se sont pas posé le problème de la réalisation pratique de multicouches infinies. B. PARDO et T. MEGADEMINI ont cherché à optimiser la répartition des épaisseurs en fonction du nombre de couches et en tenant compte des parties réelles et imaginaires des indices pour un couple de matériaux donné.

Leurs résultats sont illustrés par les figures 5 et 6 dans le cas d'une multicouche WRe/C optimisée pour λ = 4,47 nm.

.../...

La figure 5 indique les pourcentages respectifs du tungstène-rhénium et du carbone optimisant la réflectivité de la multicouche dont on a choisi à priori le nombre de périodes. Lorsque le nombre de bicouches tend vers 0, il y a autant de tungstène-rhénium que de carbone dans l'empilement et pour un nombre de périodes très grand, on retrouve la répartition des épaisseurs obtenue par l'équation de VINOGRADOV et ZELDOVICH (I.20).

La figure 6 donne la réflectivité d'une multicouche optimisée en fonction de son nombre de périodes. On observe une saturation lorsque l'épaisseur de la multicouche atteint la profondeur de pénétration du rayonnement. On voit que lorsque la saturation est atteinte, on est dans un domaine où la répartition optimale des deux matériaux dans la multicouche varie notablement en fonction du nombre de bicouches et est encore très différente de la valeur obtenue pour une multicouche infinie.

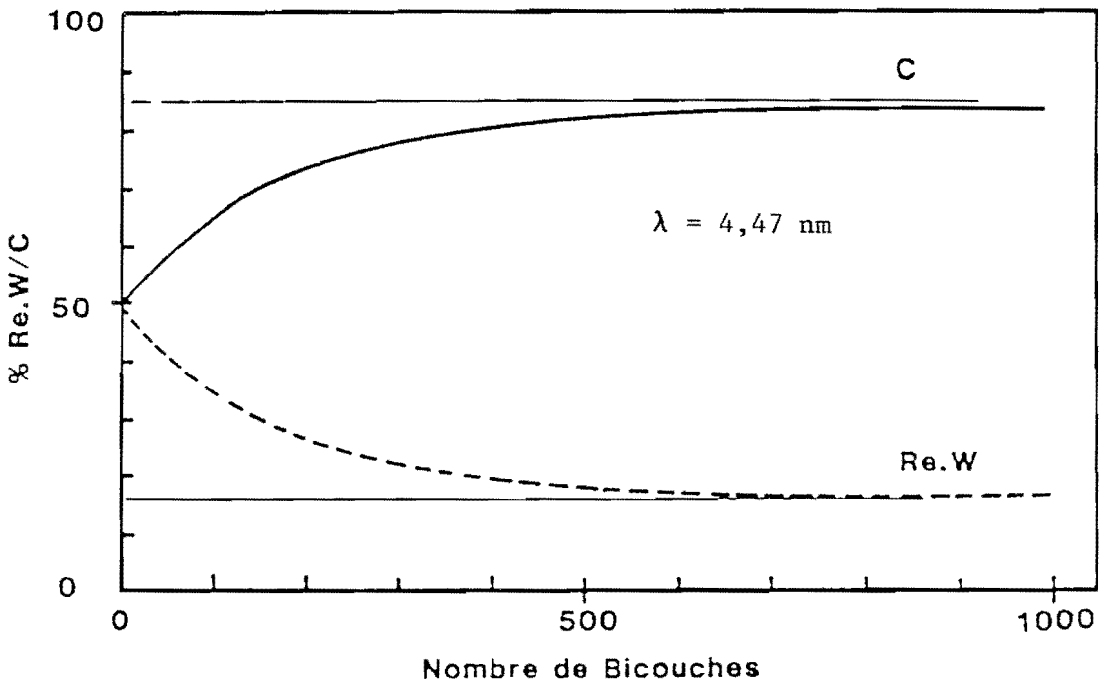


Fig. 5 : Optimisation du pourcentage de WRe et de C dans une multicouche en fonction du nombre de bicouches.

.../...

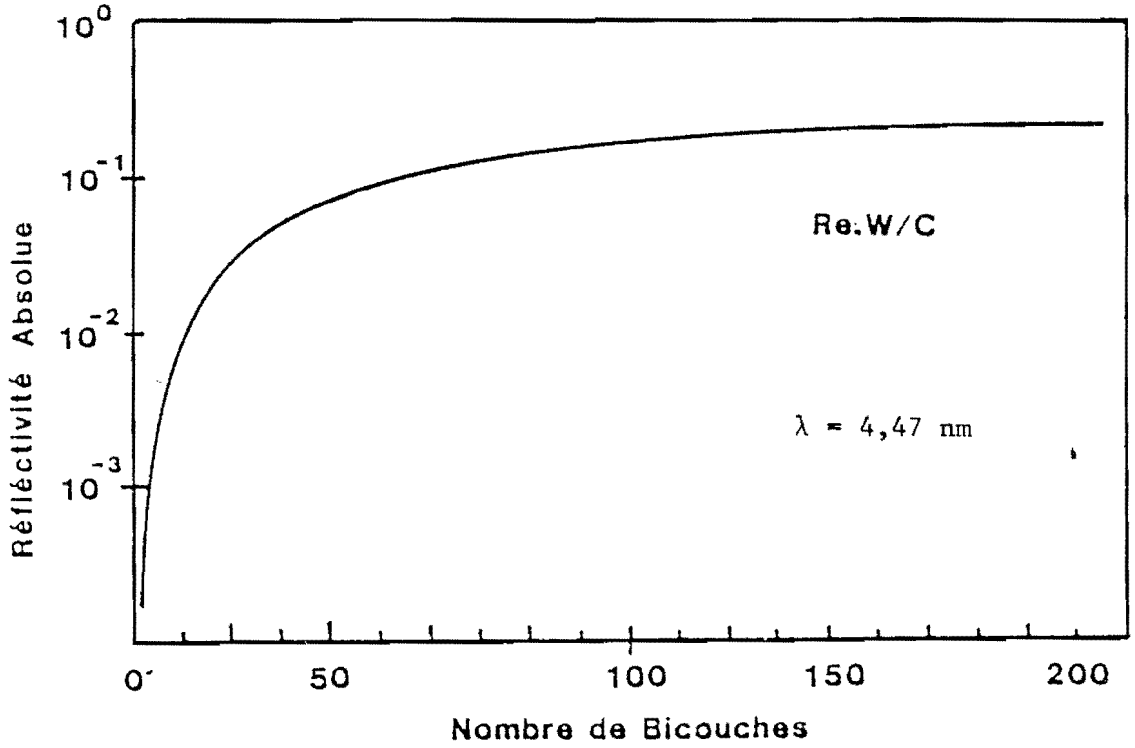


Fig. 6 : Réflectivité d'une multicouche WRe/C optimisée en fonction de son nombre de bicouches.

6 - 2 Nombre de couches de l'empilement :

Pour une multicouche idéale, la réflectivité augmente avec le nombre de périodes N, jusqu'à une valeur limite du fait de l'absorption du rayonnement incident par les matériaux. En deça de cette valeur, le nombre de périodes influe donc à la fois sur le pourvoir réflecteur et sur la bande passante de la couche qui diminue lorsque N augmente. Dans la réalité, il est indispensable de prendre en considération un paramètre très important pour la qualité des multicouches qui est la rugosité des interfaces.

Pour un dioptre plan dont les déformations ont une distribution gaussienne caractérisée par une amplitude quadratique moyenne σ, le pouvoir réflecteur est donné par l'expression :

$$R = Ro \exp \left[- (4 \pi \sigma \frac{\sin\theta}{\lambda})^2 \right] \qquad (1.24)$$

.../...

En incidence normale, et pour λ = 4,47 nm (raie K_α du carbone), on trouve :

σ (nm)	R/Ro
0,3	0,49
1	$3.7 \cdot 10^{-4}$

Une rugosité moyenne de 0,3 nm correspondant à un excellent "superpoli" optique, on mesure par cet exemple l'importance de ce paramètre, et la difficulté pratique pour réaliser de bonnes optiques à rayons X mous qui fonctionnent en incidence normale. Ce résultat peut être appliqué à une multicouche si on suppose que toutes les interfaces reproduisent fidèlement l'état de surface du substrat. Malheureusement pour la plupart des matériaux déposés sous vide, la rugosité de surface augmente en même temps que l'épaisseur moyenne e (12). La loi d'évolution $\sigma(e)$ n'est généralement pas simple dans la mesure où la croissance des couches comporte plusieurs étapes :

- nucléation des germes, plus ou poins nombreux selon la mobilité des adatomes sur le substrat ;
- croissance des amas ;
- coalescence et formation d'un film continu ;
- croissance du film continu par condensation aléatoire des adatomes.

Cet accroissement de la rugosité avec l'épaisseur fait que la qualité des couches se dégrade lorsque N augmente. Les meilleures couches étant les plus éloignées de la surface libre, il est clair que la réflectivité de l'empilement réel va passer par un maximum puis décroître au-delà d'une certaine valeur de N.

Prenons l'exemple d'une multicouche de 6,7 nm de période composée de tungstène-rhénium et de bore (fig.7). La fabrication est contrôlée avec la raie K_α du carbone (4,47 nm) et un angle d'attaque de 21,1°. Les valeurs mesurées de

.../...

la réflectivité sont inférieures à la courbe calculée, qui ne tient pas compte de la rugosité. La différence provient d'une part des erreurs commises sur les épaisseurs et d'autre part de l'augmentation de la rugosité de la surface libre du dépôt. Expérimentalement et pour la longueur d'onde de contrôle, la réflectivité croît pendant le dépôt des 7 premières périodes puis décroît pour les suivantes.

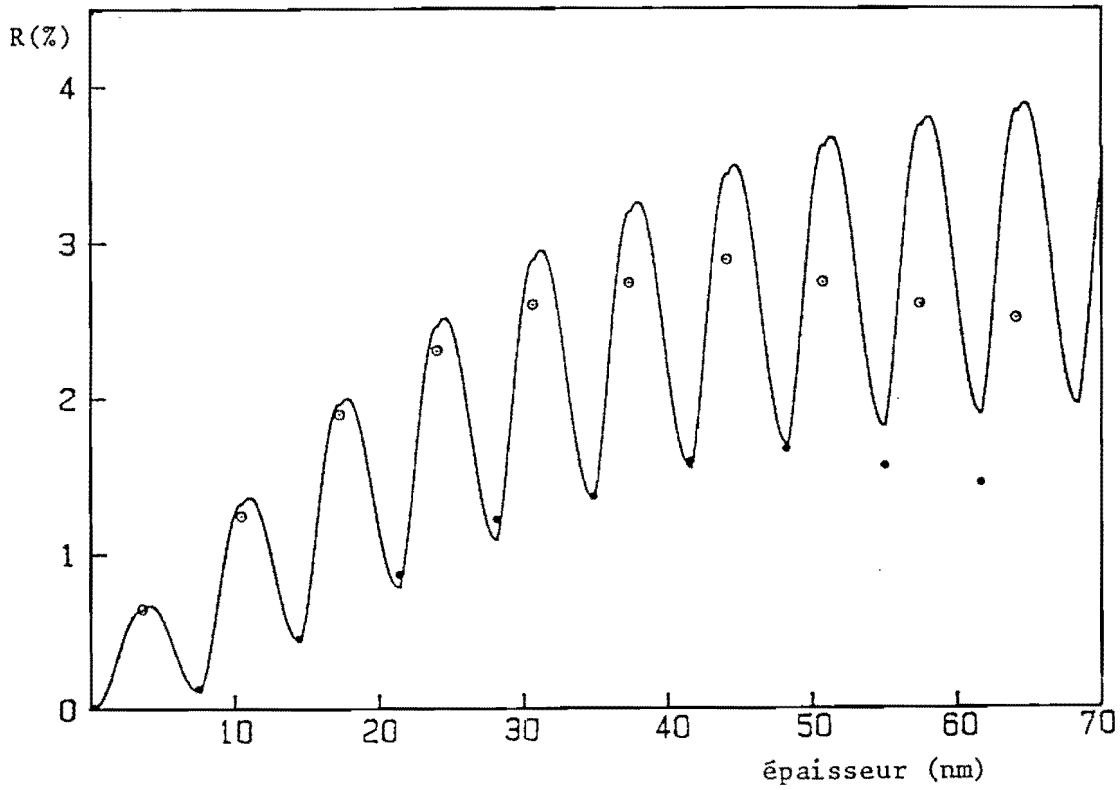


Fig. 7 : Courbe de réflectivité pendant la croissance d'une multicouche WRe/B.
λ = 4,47 nm $\quad \theta_{at} = 21,1°$

——— réflectivité calculée

• ∘ réflectivité mesurée

Dans les simulations sur ordinateur, on peut modeliser la rugosité par une couche de passage dont l'indice dépend d'une fonction erreur F(z). L'indice ne varie pas dans un plan parallèle à l'interface mais dépend de sa cote z. Dans le cas de deux matériaux d'indices n_1 et n_2 :

$$n(z) = n_1 + (n_2 - n_1)\, F(z) \qquad (1.25)$$

avec $F(z) = \dfrac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \displaystyle\int_{-\infty}^{z} \exp\left(\frac{-z^2}{2\sigma^2}\right) dz$

.../...

σ représente la rugosité dans l'hypothèse d'une distribution gaussienne.

Cette méthode permet de modifier la fonction erreur pour l'adapter à chacune des interfaces de l'empilement.

L'influence de la rugosité est très importante pour nous car elle correspond à des aspérités voisines de la longueur d'onde du rayonnement dans le domaine des rayons X. On observe souvent, comme nous le verrons dans la partie expérimentale de ce travail, des rugosités dont le σ varie de 0.4 à 1.2 nm ce qui produit une baisse de réflectivité qui n'est pas négligeable.

Nous avons vu dans ce chapitre les paramètres sur lesquels nous pouvons jouer pour réaliser nos multicouches. Nous les ajustons grâce à une étude informatique du problème à résoudre. Nous verrons plus loin sur des exemples, l'influence quantitative de toutes ces variables sur la réflectivité. Avant de passer à la réalisation des miroirs, il faut regarder si la solution théorique est réalisable pratiquement et c'est ce que nous faisons en grande partie par spectroscopie d'électrons Auger (S.E.A.).

CHAPITRE II

ÉTUDE DE LA FAISABILITÉ DES MULTICOUCHES.

II - ETUDE DE LA FAISABILITE DES MULTICOUCHES :

Nous voulons réaliser des multicouches pour des longueurs d'onde comprises entre 10 et 120 nm approximativement. Par exemple dans le cadre d'une étude pour λ = 13 nm nous devons réaliser un empilement dont les épaisseurs des couches sont respectivement de 2,5 nm pour le tungstène et 4,3 nm pour le silicium, pour une utilisation en incidence normale. Ces épaisseurs sont très faibles.

Notre but est de déterminer les conditions de dépôt pour avoir des couches ultra-minces continues, stables dans le temps et dans les conditions réelles d'utilisation des multicouches. Nous utiliserons la spectroscopie d'électrons Auger (S.E.A.) et des mesures de résistance électrique pour étudier les conditions de croissance, la composition et la stabilité des couches ultra-minces.

1 - Principe de la spectroscopie Auger (S.E.A.) :

L'émission Auger met en jeu 2 électrons, dans un atome initialement ionisé dont le trou est situé dans une couche interne (13). L'atome n'est plus dans un état stable : le trou est comblé par un électron d'une couche moins profonde afin de minimiser l'énergie globale de l'atome. L'énergie perdue par cet électron descendant sur un niveau plus bas peut être émise sous la forme d'un photon ou donnée à un autre électron qui quitte l'atome si l'énergie est suffisante. Dans le cas de l'éjection, l'électron émis à une énergie cinétique égale à la différence de l'atome simplement et doublement ionisé. C'est cet électron qui est détecté ; son énergie dépendant de la structure interne de l'atome, sa mesure va nous permettre une identification immédiate, grâce à des tables dans lesquelles les spectres de tous les éléments sont représentés.

La fig. 8 décrit le processus d'obtention de la raie $L_{2,3}VV$ du silicium (13). Le diagramme montre les niveaux d'énergie de l'élément simplement ionisé et l'élargissement du niveau de valence en bande lorsque les atomes forment

.../...

un solide. La densité électronique de la bande de valence est également représentée.

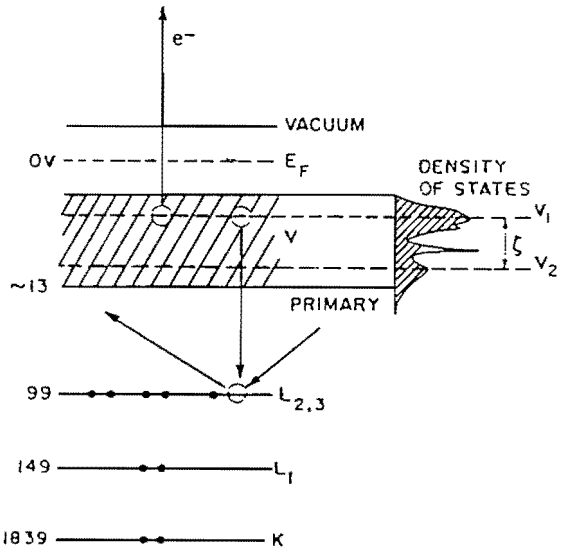


Fig. 8 : Diagramme des niveaux d'énergie du silicium, processus d'obtention de la raie Auger $L_{2,3}VV$.

L'ionisation initiale est généralement réalisée par bombardement électronique du matériau à analyser. L'énergie des électrons Auger émis est comprise entre quelques eV et quelques keV ; dans ces conditions, leur libre parcours dans la matière ne dépasse pas quelques nm pour les plus énergétiques ; les électrons Auger qui sortent de l'échantillon sans perte d'énergie ne proviennent donc que des toutes premières couches atomiques : c'est donc une méthode d'analyse de la surface des matériaux.

2 - Dispositif expérimental :

2 - 1 Spectromètre Auger :

Le dispositif expérimental est décrit par la fig. 9. Il comporte un canon à électrons permettant de bombarder la surface de l'échantillon. L'énergie des électrons incidents peut varier de 0 à 3 keV ; sa valeur est fixée en fonction de l'énergie des raies que l'on veut observer. Le courant primaire varie entre 30 et 50 µA ; la surface bombardée par le faisceau est d'environ 0,1 x 0,1 mm^2.

Les électrons secondaires émis par la cible sont sélectionnés par

.../...

un analyseur cylindrique électrostatique. Cet analyseur est composé de deux cylindres coaxiaux formant un condensateur. Le cylindre intérieur est relié à la masse tandis que l'on peut faire varier le potentiel appliqué sur le cylindre extérieur. Suivant la différence de potentiel entre les plaques du condensateur les électrons d'une certaine énergie sont guidés vers un multiplicateur d'électrons. En faisant varier la différence de potentiel on obtient un balayage en énergie du spectre électronique.

A la sortie du multiplicateur d'électrons,le signal est envoyé sur un système de détection synchrone. En effet comme le montre la fig.10, les électrons Auger apparaissent comme des petites bosses, noyées dans la courbe de distribution des énergies électroniques N(E) des électrons secondaires, dont la composante continue est supprimée par la différentiation. Les spectres que nous obtenons en fonction de l'énergie donnent en fait la dérivée du produit E.N(E) par rapport à l'énergie.

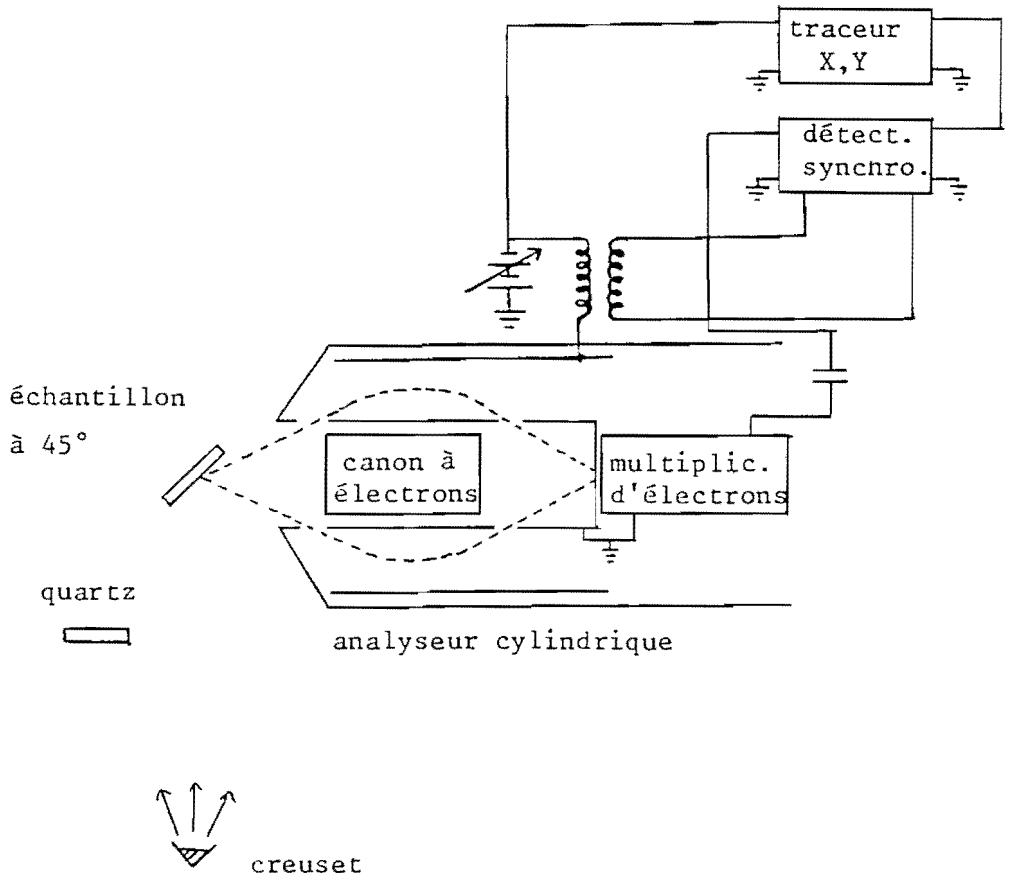


Fig. 9 : Schéma du dispositif AUGER expérimental.

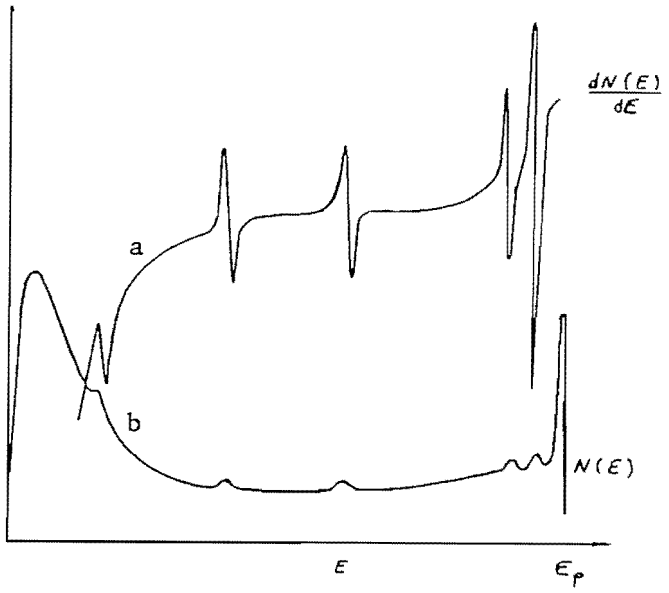


Fig. 10 : a) distribution N(E) des énergies des électrons secondaires caractéristiques d'un solide, produite par un faisceau d'électrons primaires d'énergie Ep.

b) dérivée par rapport à l'énergie de cette distribution.

2 - 2 Enceinte à vide :

Le spectromètre Auger est monté sur une enceinte de type "ultra-vide". Le système de pompage comporte une pompe à membrane et une pompe à sorption pour obtenir le vide primaire. Une pompe ionique permet d'atteindre un vide compris entre 10^{-9} et 10^{-10} Torr après un étuvage effectué grâce à une lampe placée à l'intérieur de l'enceinte. Un serpentin en cuivre dans lequel on fait circuler de l'azote liquide atténue la remontée en pression lors des évaporations.

L'enceinte est équipée d'un évaporateur à deux creusets, pour les deux matériaux de la multicouche. L'un des creusets est chauffé par effet Joule, l'autre est équipé d'un canon à électrons d'une puissance maximale de 6 kW, qui permet d'évaporer les matériaux réfractaires comme le tungstène, le niobium et le hafnium.

.../...

Un substrat de verre (10 x 30 x 3 mm) est placé à 20 cm au-dessus des creusets et orienté à 45° par rapport à la verticale et à l'axe horizontal du spectromètre Auger. On peut ainsi faire des enregistrements de spectre non seulement après la fabrication mais également pendant l'évaporation des matériaux. Un deuxième substrat, de surface plus importante (20 x 50 x 3 mm), peut être fixé horizontalement non loin du premier, pour les études ultérieures de réflectométrie de rayons X rasants sur le goniomètre fonctionnant à la longueur d'onde de 0,154 nm afin de correler ces résultats avec ceux de la S.E.A.

Les dépôts sont contrôlés à l'aide d'une microbalance à quartz. Pendant l'évaporation des matériaux réfractaires, le quartz est refroidi par une circulation d'eau pour minimiser la dérive thermique. Après un étalonnage de la correspondance épaisseur déposée - variation de fréquence, il permet de réaliser des multicouches ; mais cette méthode est loin d'être satisfaisante, le quartz n'est pas assez stable , il n'est pas assez précis pour les faibles épaisseurs que nous utilisons ; c'est l'une des raisons qui ont conduit à développer la méthode de contrôle d'épaisseur par réflectométrie in situ que nous verrons dans le chapitre suivant.

Le porte échantillon est équipé d'une résistance et d'une circulation d'azote liquide pour chauffer par effet Joule ou refroidir les deux échantillons, la température étant mesurée par un thermocouple chromel-alumel. Une microvanne montée sur l'enceinte et sur laquelle on peut fixer différentes bouteilles de gaz permet de faire les dépôts en atmosphère contrôlée.

Nous pouvons donc faire varier les principaux paramètres (température, vide, pression partielle de gaz) pour faire notre étude par spectroscopie Auger dans différentes conditions expérimentales.

.../...

3 - Applications de la spectroscopie Auger :

Par spectroscopie Auger nous étudions la composition élémentaire des couches, les interfaces entre deux matériaux et les mécanismes de formation des dépôts.

3 - 1 Composition de la couche :

a) Identification des éléments :

Le montage utilisé permet d'étudier les couches pendant et après le dépôt. En faisant des enregistrements de spectre durant l'évaporation, on identifie tous les atomes qui arrivent sur le substrat : le corps que l'on évapore et les éléments provenant des gaz résiduels de l'enceinte et qui viennent contaminer la couche. Lorsque le film est réalisé, on peut surveiller l'évolution de la surface libre en observant les modifications du spectre.

Par exemple la fig. 11 montre l'évolution en intensité des raies de l'oxygène, du carbone et du tungstène lors de la réalisation d'une multicouche W/C. Pendant l'évaporation d'une couche de tungstène, l'amplitude de la raie à 179 eV augmente tandis que celle du carbone (272 eV) diminue sans disparaître complètement ; dans le même temps, on voit croître la raie de l'oxygène à 515 eV. Ce n'est donc pas une couche de tungstène pur que l'on réalise mais plutôt le l'oxyde de tungstène avec des traces de carbone. Après l'arrêt du dépôt la raie de l'oxygène augmente encore, ce qui montre que la couche continue à s'oxyder en surface. Lors de l'évaporation de carbone, le pic du tungstène et le pic de l'oxygène disparaissent complètement : on fabrique réellement un film de carbone.

Connaître la composition exacte d'un couche est très important car la présence d'impuretés comme l'oxygène, peut modifier dramatiquement les indices du film, principalement pour le matériau léger de l'empilement. Les principaux éléments de contamination que nous détectons sont : l'oxygène,

.../...

le carbone et l'azote. Rappelons que l'hydrogène ne donne pas d'émission Auger puisqu'il faut un minimum de trois électrons par atome.

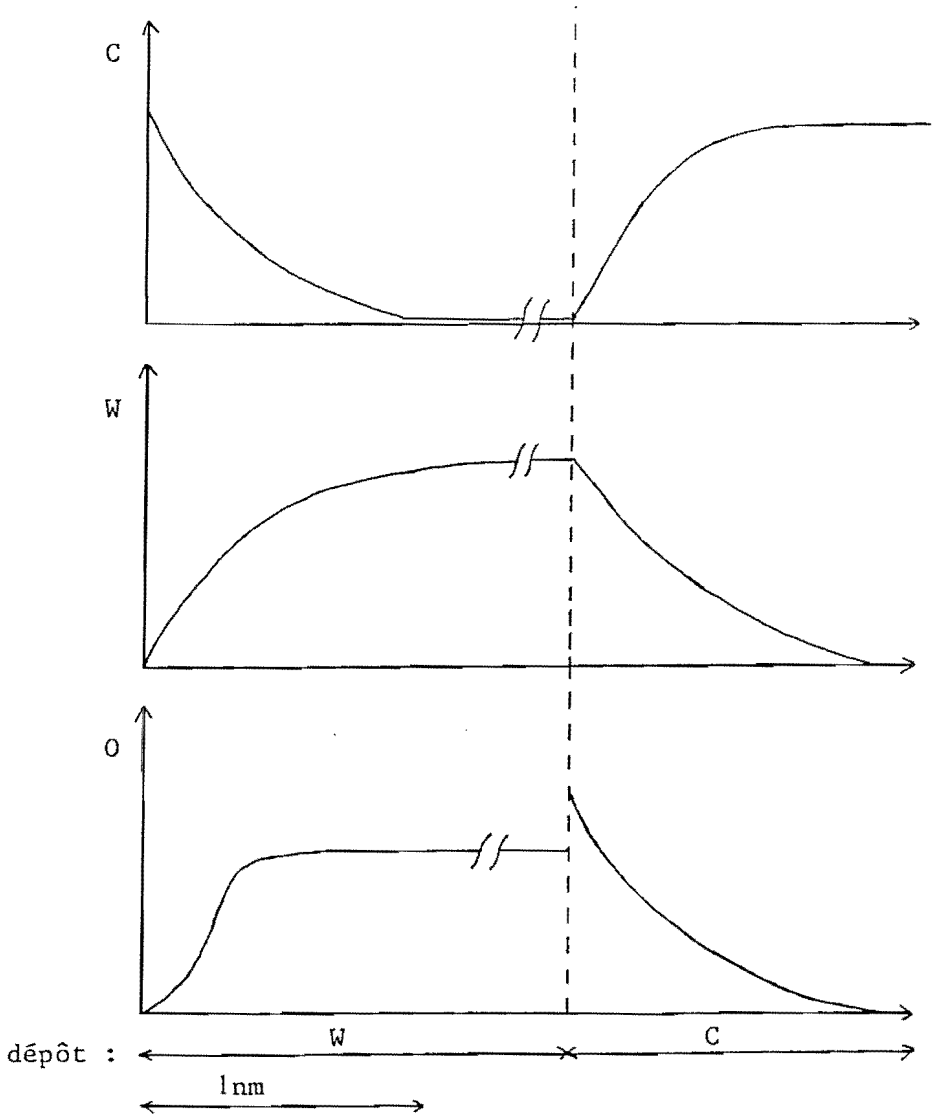


Fig. 11 : Evolution en intensité des raies Auger du tungstène, du carbone et de l'oxygène lors de la réalisation d'une multicouche W/C.

.../...

b) Etat chimique des éléments :

Dans certains cas les électrons Auger proviennent des couches externes de l'atome, donc des niveaux intervenant dans les liaisons chimiques. La S.E.A. est alors sensible à l'état chimique de l'élément et à son environnement.

Prenons l'exemple de l'aluminium donné par la Fig. 12, qui représente les diagrammes des niveaux d'énergie pour l'atome d'aluminium isolé, dans le métal Al et dans l'oxyde Al_2O_3 .

Lorsque l'on considère un atome isolé, les niveaux d'énergie sont bien déterminés et l'énergie cinétique de l'électron éjecté est connue avec précision, on obtient pour le signal Auger un pic $L_{2,3}M_1M_{2,3}$ très étroit. Dans le cas du métal les électrons externes de l'atome sont répartis dans une bande de valence partiellement remplie. Il en découle une incertitude sur la valeur de l'énergie cinétique des électrons éjectés par l'échantillon et donc un élargissement de la raie. Le diagramme de l'alumine montre une bande de valence pleine dont la distribution électronique correspond, très approximativement, à un déplacement des niveaux d'énergie de l'atome isolé, le spectre des raies est déformé et décalé en énergie.

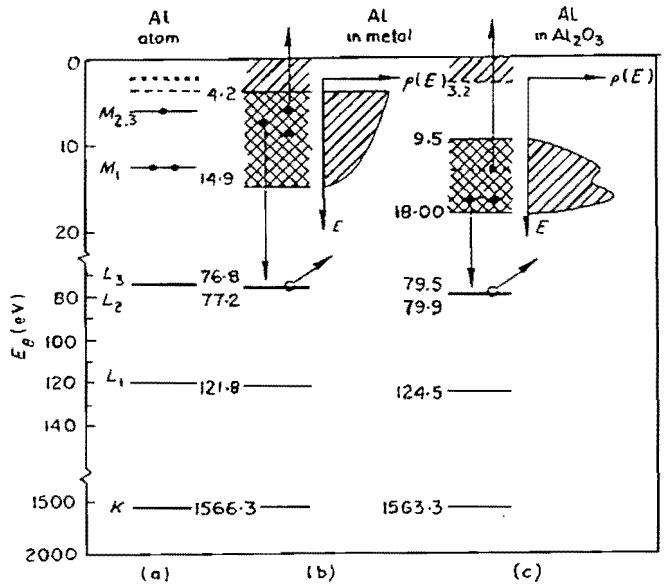


Fig. 12 : Diagramme des niveaux d'énergie de l'atome d'aluminium a) isolé, b) dans le métal Al, c) dans l'alumine Al_2O_3 (14)

bande vide

" pleine.

.../...

L'effet Auger fait intervenir 3 électrons, on ne peut détecter que les éléments de nombre atomique $Z \geqslant 3$, la méthode n'est donc pas sensible à l'hydrogène mais comme le montre la fig. 13 pour le silicium, on peut parfois détecter indirectement la présence d'hydrogène à partir des déformations caractéristiques du pic de l'élément avec lequel il est lié.

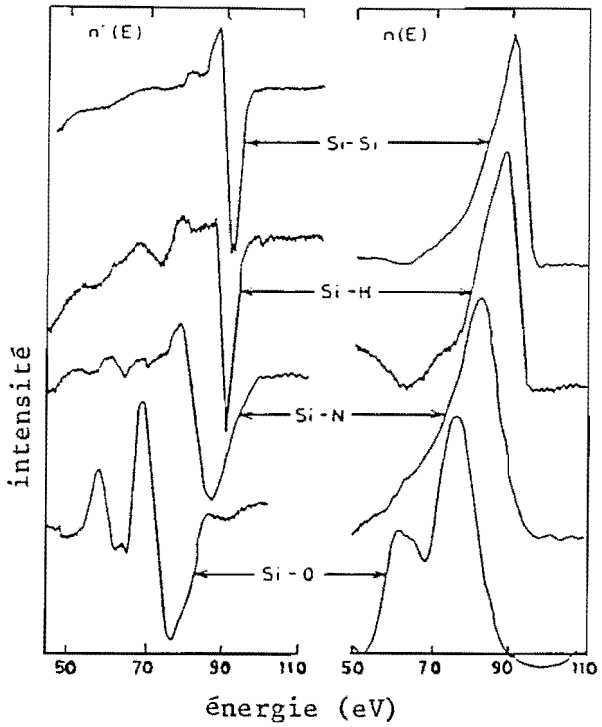


Fig. 13 : Schéma montrant les déformations et les déplacements en énergie du pic Auger du silicium dans le cas de liaison avec de l'hydrogène, de l'azote ou de l'oxygène (15)

Il est intéressant de donner également l'exemple du carbone (fig.14), que l'on retrouve très souvent dans nos couches. La forme de la raie Auger KLL étant très différente pour le carbone amorphe et pour les carbures formés par les atomes de la couche et le carbone.

.../...

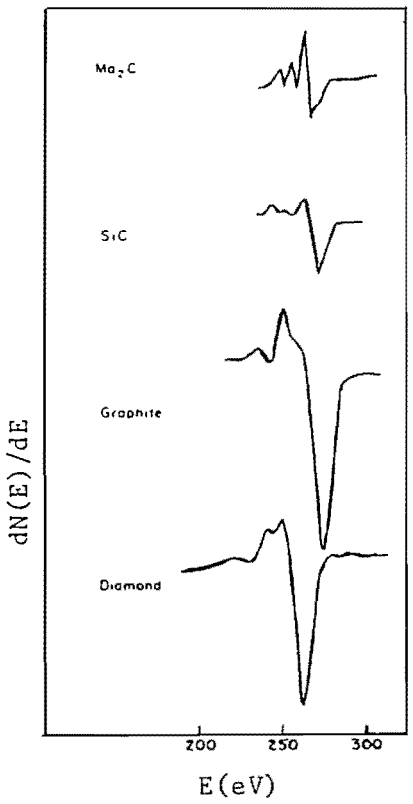


Fig. 14 : Raie Auger KLL du graphite, du diamant, du carbure de silicium et du carbure de molybdène (16).

.../...

3 - 2 Etude des interfaces :

Les miroirs interférentiels sont formés de couches extrêmement minces superposées les unes sur les autres. Il faut vérifier que la structure prévue par la théorie est bien réalisable, donc que les deux matériaux ne se mélangent pas entre eux pour former un composé ou un alliage. L'empilement comporte deux matériaux (1 et 2) ; il faut examiner les deux interfaces présentes, c'est-à-dire le matériau 1 déposé sur le matériau 2 et le matériau 2 sur le matériau 1. On procède de la même manière dans les deux cas : on recouvre l'un des matériaux avec une couche très mince de l'autre, juste suffisante pour faire disparaître les raies Auger du matériau qui sert de substrat. On continue les enregistrements du spectre après l'arrêt du dépôt ; si le système évolue dans le temps, on voit alors réapparaître les raies du substrat. Deux cas peuvent alors se présenter :
1) La couche ultra-mince du matériau absorbé se réarrange par diffusion des atomes, pour former les ilôts, entre lesquels l'épaisseur de la couche devient insuffisante pour arrêter les électrons Auger émis par le substrat.
2) Les deux matériaux se mélangent au niveau de l'interface, et des atomes du substrat arrivent au voisinage de la surface libre. La formation d'un composé peut éventuellement provoquer une déformation des raies Auger qui font intervenir la bande de valence des atomes.

Dans les deux cas, la vitesse de migration des atomes dépend de la température du substrat ; elle peut être réduite en abaissant la température pendant le dépôt, mais la multicouche risque d'évoluer lors du réchauffement final. Une solution éventuelle consiste à incorporer aux matériaux certains éléments qui stabiliseront les dépôts, à condition qu'ils ne perturbent pas trop les indices optiques.

Si l'interface paraît stable, il y a encore une expérience intéressante à faire : elle consiste à déposer le matériau sans recouvrir entièrement la couche inférieure et à vérifier que les raies des deux corps visibles

.../...

dans le spectre ne se modifient pas à l'arrêt de l'évaporation. S'il n'y a pas de changement, alors l'interface est stable.

Enfin, suivant les conditions de stockage ou d'utilisation, les empilements peuvent évoluer soit par interdiffusion lente des deux matériaux, soit par incorporation de gaz contaminants (oxygène) à partir de la surface libre. On pourra le vérifier en contrôlant périodiquement leurs propriétés optiques, ou encore en procédant à une analyse par S.E.A. au cours d'un décapage ionique progressif afin d'obtenir le profil de concentration des différents constituants. Cette dernière technique a cependant deux inconvénients : d'une part elle est destructrice et d'autre part le décapage ionique perturbe le profil initial sur une distance qui est du même ordre de grandeur que l'épaisseur moyenne des couches élémentaires.

3 - 3 Croissance des couches :

Il a été démontré que la mesure, en fonction du temps ou de la variation de fréquence d'un quartz, de l'intensité des pics Auger du substrat et de la couche pendant le dépôt permettait la détermination du mécanisme de croissance du film (17).

Le contrôle du dépôt peut s'effectuer à partir de la croissance et de la décroissance de l'intensité des pics Auger de la couche et du substrat respectivement. Des calculs ont été effectués par différents auteurs dont on trouvera les références dans l'article de J.P. BIBERIAN (17). Dans le cas d'une croissance couche par couche on obtient un signal donné par la fig. 15. La formation de chaque monocouche correspond à la décroissance (la croissance) linéaire du pic Auger du substrat (de la couche) avec modification de la pente au début de chaque nouvelle monocouche. Plus il y a de couches, plus la pente de la décroissance (croissance) est faible et moins la méthode est sensible. La connaissance de l'épaisseur d'un plan atomique permet de déterminer l'épaisseur de matériau déposé. Ce mécanisme

.../...

de croissance s'observe sur les faces denses de substrats monocristallins. Il résulte de la diffusion superficielle des adatomes suivie de leur fixation sur certains sites particuliers tels que les marches monoatomiques de la surface.

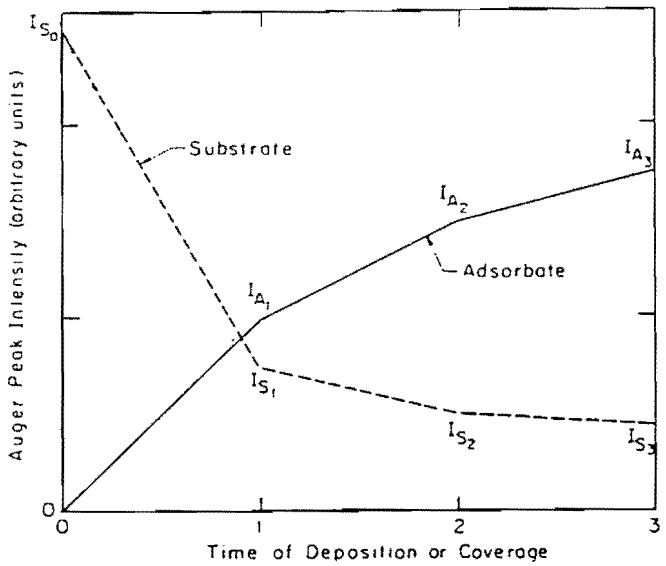


Fig. 15 : Variation de l'intensité des raies Auger du substrat et de la couche en fonction du temps de déposition dans le cas d'une croissance couche par couche.

En ce qui concerne les dépôts amorphes, on observe la plupart du temps une décroissance (croissance) linéaire jusqu'à un recouvrement voisin de 0,5 monocouche, puis la pente varie de façon continue du fait de la croissance continue qui résulte de la condensation aléatoire des adatomes sur la surface. La fig. 16 représente les variations d'amplitude des raies Auger du substrat et de l'adsorbat pendant un dépôt de tungstène sur du carbone. On observe une variation linéaire de l'intensité des raies jusqu'à une épaisseur moyenne de tungstène légèrement inférieure à 0,2 nm.

.../...

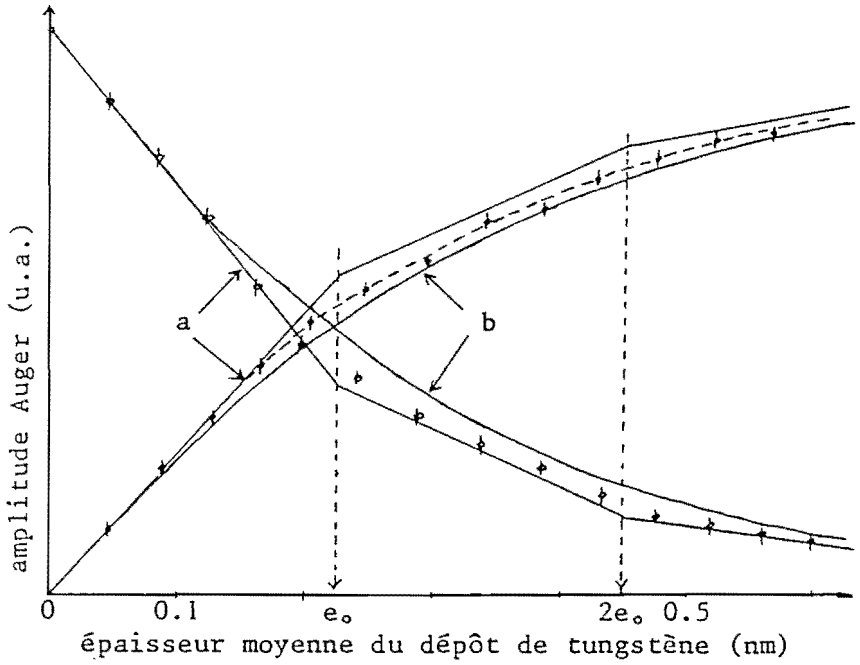


Fig. 16 : Evolution de l'amplitude des raies AUGER du tungstène (ϕ) et du carbone (ϕ) pendant le dépôt à vitesse constante du tunstène sur le carbone. e_o est la distance interréticulaire d_{110} = 0,2238 nm du tungstène massif cubique centré. Les courbes a et b résultent d'une simulation du phénomène sur ordinateur (18).

Si la mobilité superficielle des adatomes est grande, il peut alors se former des germes tridimensionnels qui croissent sous forme d'amas isolés. Dans ces conditions la vitesse de croissance (décroissance) de l'amplitude des raies Auger de l'adsorbat (du substrat) en fonction du recouvrement est beaucoup plus faible. Il existe enfin un mécanisme intermédiaire correspondant à l'adsorption d'une première monocouche suivie de la formation d'amas tridimensionnels. Ces différents cas sont illustrés sur la figure 17.

Pour s'affranchir des incertitudes sur la vitesse de dépôt, on représente les variations d'intensité des raies du matériau (substrat) en fonction de celles de l'autre (adsorbat).

.../...

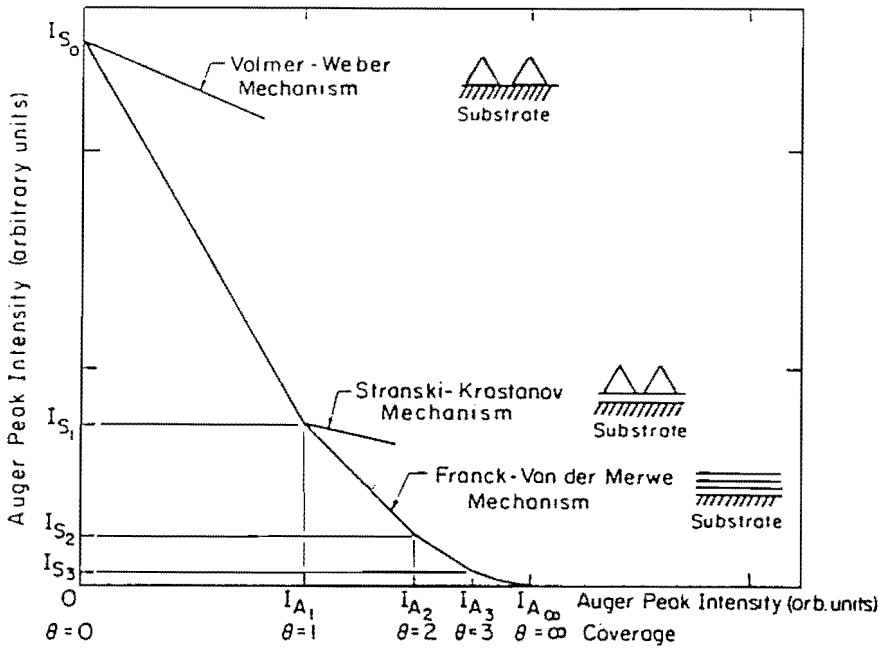


Fig. 17 : Disparition de la raie Auger du substrat en fonction de la croissance de la raie Auger de la couche.

L'analyse quantitative des spectres Auger est toujours une opération délicate. Le calcul de l'intensité émise dans une raie Auger par un élément donné repose sur la connaissance de paramètres difficiles à déterminer expérimentalement, tels que la probabilité d'ionisation des atomes, ou le facteur de rétrodiffusion des électrons primaires qui détermine les effets de matrice. Une autre méthode consiste à comparer les spectres à ceux de composés bien définis ; là encore, des erreurs peuvent intervenir, dues aux modifications locales de l'échantillon par le faisceau d'électrons primaires par exemple dans le cas de matériaux isolants tels que des oxydes, pour le dosage de l'oxygène dans les métaux (19).

.../...

Dans notre travail, nous utilisons principalement la S.E.A. pour caractériser les mécanismes de croissance et la stabilité des dépôts ultra-minces, ainsi que pour une analyse qualitative des échantillons pendant ou après leur fabrication.

4 - Mesures de résistance :

Pour les matériaux conducteurs, la S.E.A. peut être complétée par la mesure de variation de la résistance électrique de la couche, déposée sur un substrat isolant.

4 - 1 Montage expérimental :

La mesure de résistance est effectuée par la méthode dite des quatres points, qui permet d'avoir un champ électrique uniforme dans la couche.

On utilise des substrats possédant des contacts en or, sur lesquels sont soudés 4 fils en or comme l'indique la fig. 18. Deux de ces fils permettent de faire traverser la couche par un courant électrique constant obtenu grâce à un générateur de courant. Les deux autres fils permettent de mesurer la tension aux bornes de la couche. La résistance est obtenue par la loi d'Ohm en faisant le rapport tension/courant. La résistance des contacts en série avec la couche est négligeable.

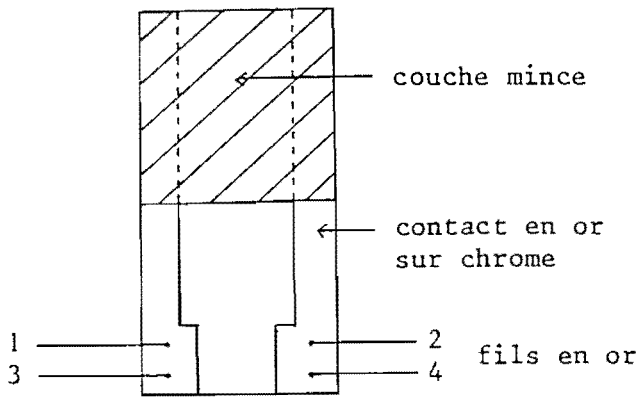


Fig.18 : Schéma de l'échantillon pour la mesure de résistance (vue de dessus).
1 et 2 : mesure de la tension
3 et 4 : passage du courant.

.../...

4 - 2 Applications de la mesure de résistance :

La résistance électrique d'une couche mince métallique dépend de la morphologie du dépôt (amas isolés, couche lacunaire ou continue), de la température et des imperfections de structure. Nous l'utiliserons donc pour contrôler successivement la croissance de la couche, puis son évolution pendant un traitement thermique.

Avant le dépôt le circuit électrique du substrat est ouvert, on a une résistance infinie entre les contacts. Au début de l'évaporation les atomes se fixent suivant un processus propre au matériau et lorsque la couche commence à être continue on observe une brusque diminution de la résistance. En contrôlant l'évaporation à l'aide d'une microbalance à quartz,on peut déterminer l'épaisseur minimale à déposer pour avoir une couche continue. Par exemple, cette méthode a permis de déterminer que les couches de tungstène - rhenium sont continues sur du carbone à partir d'une épaisseur de 1,5 nm, tandis qu'il faut atteindre 3 nm dans le cas de dépôt sur du verre.

La résistivité dépend de la température et de la densité de défauts de la couche. La mesure des variations de la résistance en fonction de la température va nous donner des renseignements sur les évolutions de la structure de la couche. Le matériau est déposé sur un substrat à la température t_1 assez basse pour obtenir des dépôts continus les plus minces possible, en limitant la mobilité des atomes condensés ; la couche est généralement très désordonnée, puis la température est élevée jusqu'à une valeur t_2 pour que le film se recristallise pour stabiliser le matériau et améliorer l'état de surface. La recristallisation entraîne une diminution irréversible de la résistance électrique, due à la diminution de la densité de défauts. Au-delà de la température pour laquelle la cristallisation est terminée, on observe une croissance linéaire de la résistance en

.../...

fonction de la température; la couche a un comportement métallique. Si on fait de nouveau varier la température entre t_1 et t_2 la résistance varie linéairement et réversiblement ; la couche a une structure qui ne change plus, la densité de défauts est fixe et la résistivité ne dépend plus que de la température.

Nous verrons dans la partie expérimentale de ce travail, l'application de cette méthode de mesure de résistance aux films de magnésium.

Dans notre travail nous privilégions la spectroscopie Auger, nous utilisons la méthode de la mesure de résistance dans les cas particuliers de métaux à bas point de fusion, qui sont recristallisés en couche mince à la température ambiante. La S.E.A. ne permet pas, comme les méthodes de diffraction électronique ou ionique, d'atteindre la structure des surfaces; mais même si elle ne répond pas à toutes nos questions, elle reste pour nous un outil de choix pour la caractérisation métallurgique des empilements.

CHAPITRE III

FABRICATION DE MULTICOUCHES AVEC CONTRÔLE DE L'ÉPAISSEUR PAR RÉFLECTOMÉTRIE IN SITU.

III - FABRICATION DE MULTICOUCHES AVEC CONTROLE DE L'EPAISSEUR PAR REFLECTOMETRIE IN SITU

Nous utilisons une méthode d'évaporation sous vide par bombardement électronique avec contrôle de l'épaisseur par mesure de la réflectivité de rayons X mous pendant le dépôt. Cette méthode mise en oeuvre à l'Institut d'Optique par J.P. CHAUVINEAU et coll. (20), permet d'ajuster la période et de contrôler la régularité des empilements. Elle a été utilisée pour la première fois par E. SPILLER (21) aux Etats Unis.

1 - Principe de la méthode de contrôle de l'épaisseur par réflectométrie in situ :

La méthode de contrôle de l'épaisseur repose sur la mesure de la réflectivité de la couche pendant sa formation, c'est-à-dire sur la variation de la réflectivité du film avec son épaisseur. Par son principe elle ne diffère pas de celle utilisée dans le visible pour la réalisation de multicouches diélectriques.

Nous étudierons théoriquement d'abord le cas d'une couche simple, puis celui d'une multicouche, en utilisant des hypothèses simplificatrices ne permettant pas un calcul rigoureux mais présentant simplement la méthode de contrôle.

1 - 1 Couche unique :

Nous nous plaçons dans le cas de l'incidence normale. La réflectivité d'une couche unique, calculée à partir des équations de MAXWELL et des conditions aux limites, est donnée par la relation :

$$R = r \cdot \tilde{r} = |r|^2$$

Le coefficient de reflexion en amplitude r ayant pour expression :

$$r = \frac{(1-n_1)\ (n_1+n_2) + (1+n_1)\ (n_1-n_2)\ \exp\ (-2\ i\phi)}{(1+n_1)\ (n_1+n_2) + (1-n_1)\ (n_1-n_2)\ \exp\ (-2\ i\phi)}$$

.../...

avec : n_1 indice de la couche

n_2 indice du substrat

e épaisseur de la couche

$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} n_1 e$ étant le déphasage

En exprimant cette relation en fonction des coefficients de FRESNEL r_1 et r_2 des dioptres vide-couche et couche-substrat, on obtient :

$$r = \frac{r_1 + r_2 \exp(-2 i \phi)}{1 + r_1 r_2 \exp(-2 i\phi)}$$

avec $r_1 = \frac{1-n_1}{1+n_1}$ et $r_2 = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}$

d'où l'expression du facteur de réflexion en intensité :

$$R = \frac{R_1 + R_2 \exp\left[-2 i(\phi - \tilde{\phi})\right] + r_1 \tilde{r}_2 \exp(2 i \tilde{\phi}) + \tilde{r}_1 r_2 \exp(-2 i \phi)}{1 + R_1 R_2 \exp\left[-2 i(\phi - \tilde{\phi})\right] + r_1 r_2 \exp(-2 i \phi) + \tilde{r}_1 \tilde{r}_2 \exp(2 i \tilde{\phi})}$$

avec $R_1 = r_1 \cdot \tilde{r}_1$ et $R_2 = r_2 \cdot \tilde{r}_2$

$\tilde{x}$ étant la quantité conjuguée de x

Si l'on écrit $n = 1 - \delta + i\beta$ avec δ et β petits devant l'unité, comme c'est le cas dans le domaine des longueurs d'onde qui nous intéressent, on peut exprimer le déphasage ϕ sous la forme :

$$\phi = \rho - i \mu e$$

avec $\rho = (1 - \delta) \frac{2\pi e}{\lambda}$ et $\mu = -\frac{2\pi\beta}{\lambda}$

Pour simplifier nous prendrons comme substrat le vide, on a alors :

$n_2 = 1$ d'où $r_1 = -r_2$ et $R_1 = R_2$

.../...

a) Couche non absorbante :

Pour une couche non absorbante :

$\beta = 0$ donc $\mu = 0$ et r_1 est réel

On a alors pour la réflectivité :

$$R = R_1 \frac{2 - 2 \cos 2\rho}{1 + R_1^2 - 2 R_1 \cos 2\rho}$$

La réflectivité est donc représentée par une fonction périodique, de période :

$$\rho = \pi$$

ce qui correspond pour une période, à une variation de l'épaisseur :

$$\Delta e = \frac{\lambda}{2(1 - \delta)}$$

La réflectivité est donc une fonction périodique de l'épaisseur, dont les maxima et les minima correspondent à l'addition en phase ou en opposition de phase des faisceaux réfléchis par les deux dioptres

b) Couche absorbante :

Dans le cas d'un couche absorbante et en considérant que la réflectivité d'un dioptre en X - UV est très faible en incidence normale donc que $R_1 \ll 1$ et $R_1^2 \ll 1$, on obtient l'expression :

$$R \simeq R_1 \left[1 - \exp(-4 \mu e) - 2 \exp(-2 \mu e) \cos 2\rho \right]$$

d'où après développement de l'exponentielle :

$$\frac{R}{R_1} = 2 (1 - \cos 2\rho) (1 - 2 \mu e)$$

On peut exprimer la réflectivité de la couche par une fonction périodique de l'épaisseur amortie par l'absorption du matériau. Pour

.../...

les longueurs d'onde de contrôle (4,47 nm et 6,67 nm) les indices des matériaux sont très proches de 1 ; l'épaisseur optique d'un film est pratiquement égale à son épaisseur géométrique, la pseudo-période correspond donc a une variation géométrique bien définie de l'épaisseur. Pour les films absorbants très épais, la pseudo-période de cette fonction n'est pas constante mais comme on le voit sur la fig. 19, qui nous montre la simulation du signal obtenu par réflectométrie pendant le dépôt d'une couche de tungstène-rhénium, les minima sont pratiquement équidistants.

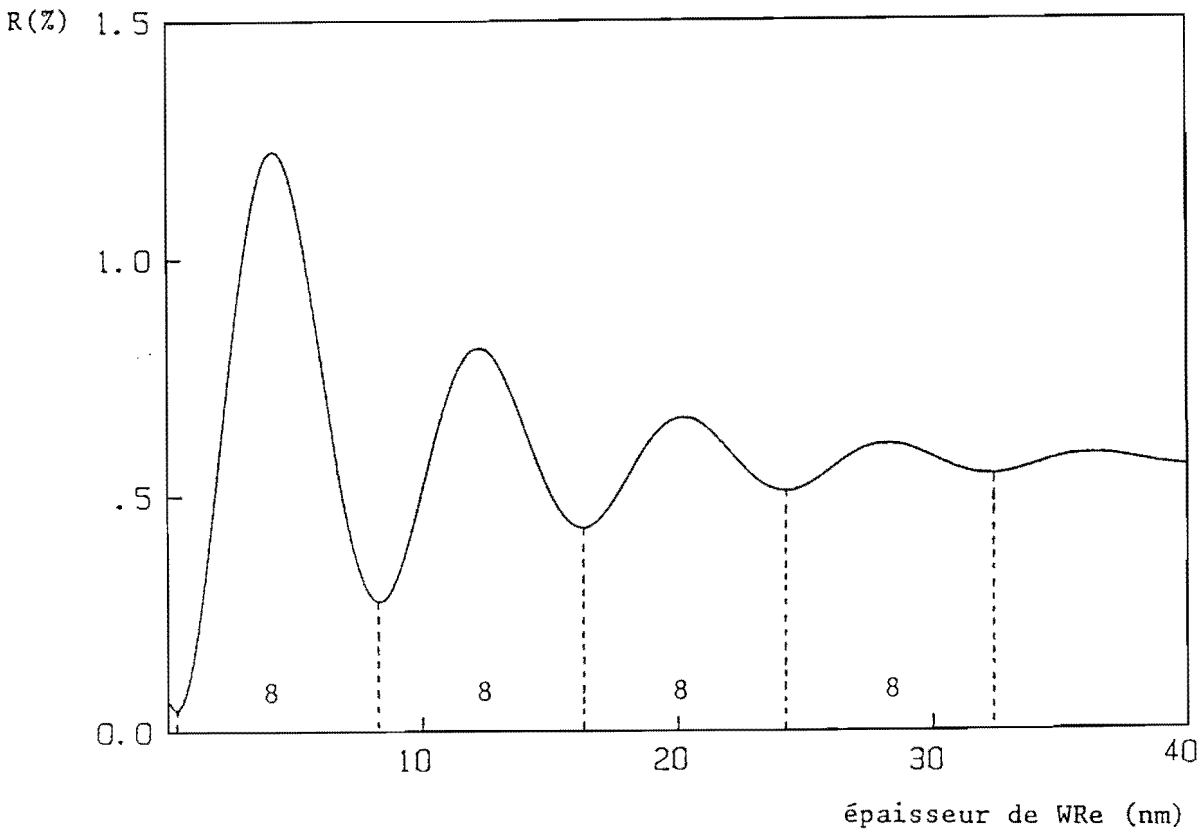


Fig. 19 : Réflectivité calculée d'une couche de WRe en fonction de l'épaisseur (λ_c = 4,47 nm, θ_{inc} = 72°)

Les films de corps lourd des multicouches ne dépassent pas 6 nm, nous pouvons négliger l'influence de la réfraction et de l'absorption

.../...

sur la position des extrêma. Nous contrôlons donc l'épaisseur de manière précise en pointant les maxima et les minima.

1 - 2 Multicouche :

La fig. 20 montre la variation, pendant la fabrication, de la réflectivité calculée d'un empilement de strates alternées de tungstène-rhénium et de silicium pour un angle d'incidence de 72° et pour une longueur d'onde de 4,47 nm (K_α du carbone).

La méthode de dépôt consiste à changer de matériau à chaque passage par un extrêmum de la réflectivité (dans le cas d'une réalisation de l'ordre de BRAGG n° 1). On commence par déposer le corps lourd, la réflectivité croît. A partir du maximum on passe à l'élément léger de l'empilement. La décroissance pendant le dépôt du matériau transparent est plus faible que la croissance obtenue avec le matériau absorbant, parce que dans le cas de l'élément léger la réflectivité du dioptre film-vide et l'absorption sont plus petites que dans le cas du corps lourd. On change de nouveau le matériau au passage par le minimum de réflectivité, et ainsi de suite .... On obtient un accroissement de la réflectivité de la multicouche en fonction du nombre de périodes déposées ; on termine l'empilement par une strate absorbante pour être sur un maximum.

Il faut noter que la distinction entre matériaux absorbant et transparent n'est pas toujours significative pour le rayonnement utilisé pour le contrôle in situ, sa longueur d'onde pouvant être très différente de celle pour laquelle est conçue la multicouche. Dans ce cas le gain de réflectivité en fonction du nombre de périodes est peu important pendant le dépôt et ne concerne que les premières bicouches.

.../...

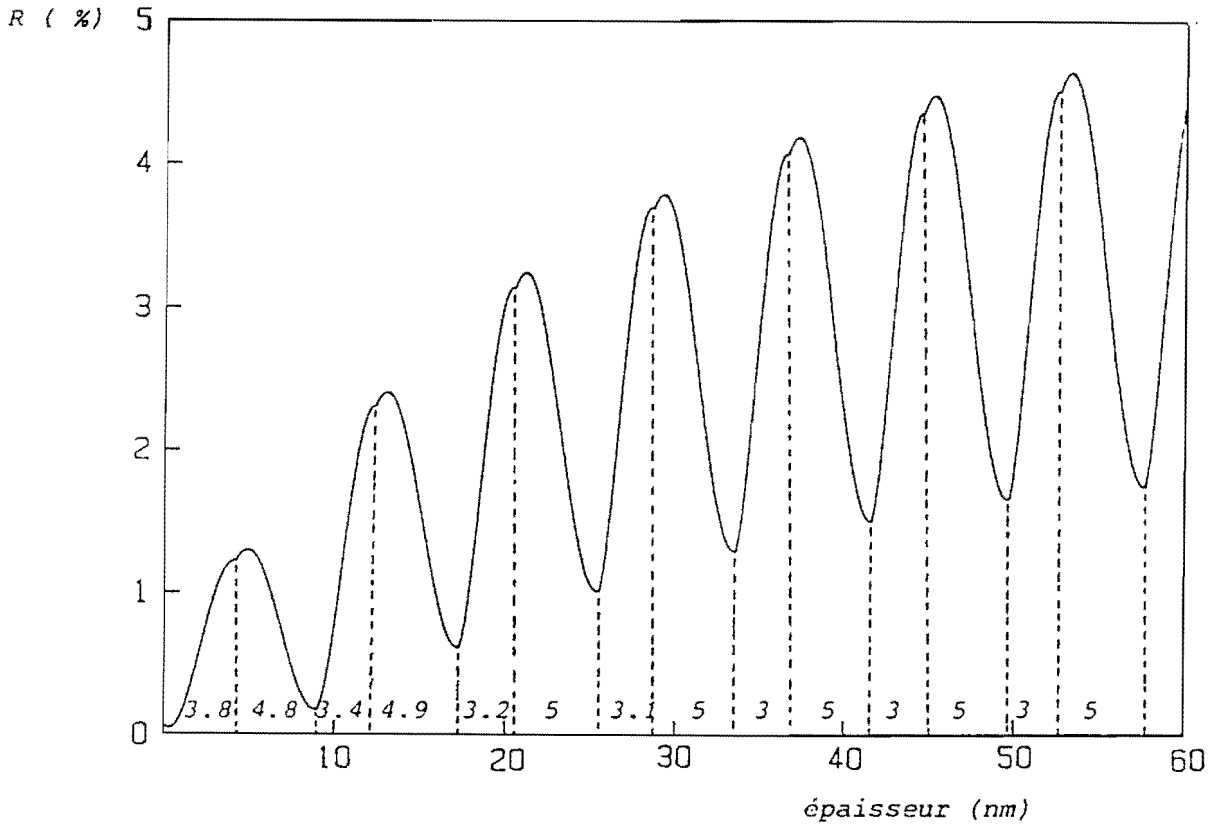


Fig. 20 : Réflectivité calculée d'une multicouche WRe/Si pendant la fabrication (λ_c = 4,47 nm, θ_{inc} = 72°)

2 - Montage expérimental :

L'utilisation de matériaux réfractaires dans la fabrication des multicouches nécessite l'emploi de techniques de fabrication comme la pulvérisation cathodique en mesurant simplement le temps ou dépôt ou en intégrant le courant cible, ou le bombardement électronique en contrôlant l'épaisseur par mesure de réflectivité en X mous. Nous utilisons le second procédé, le premier étant mis en œuvre dans d'autres laboratoires (22).

2 - 1 Enceinte à vide :

Le schéma général du bâti est donné par la fig. 21. L'enceinte à vide est une cloche en acier inox de 1.10 m de hauteur et de 0.45 m de diamètre. Au cours de nos travaux nous avons ajouté un raccord de

.../...

0,5 m de hauteur pour éloigner les échantillons des creusets, ceci afin de minimiser les gradients d'épaisseur dans les couches (distance creusets-échantillons ≃ 1 m).

Nous possèdons plusieurs porte-substrats de hauteur réglable,qui permettent d'ajuster l'angle d'incidence du rayonnement de contrôle sur la surface du substrat. Nous avons la possibilité de chauffer ou de refroidir les échantillons, la température étant mesurée avec un thermocouple chromel-alumel.

Le montage est équipé d'une microbalance à quartz, que nous utilisons pour régler la vitesse d'évaporation, et de deux pièges à azote liquide qui maintiennent le vide dans un gamme de pression acceptable pendant les dépôts.

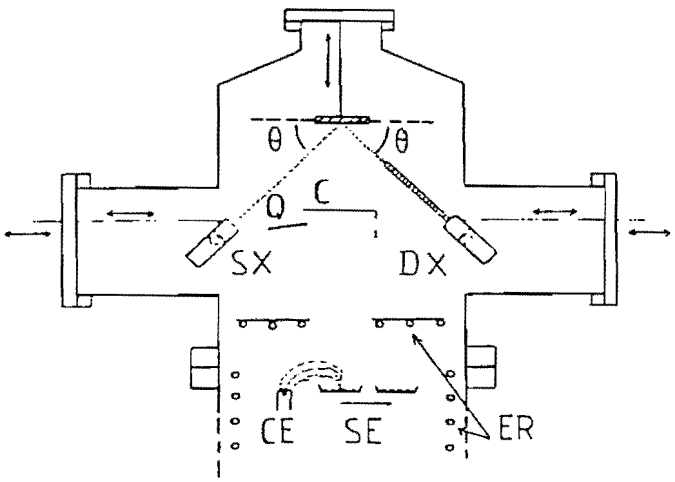


Fig. 21 : Schéma de l'évaporateur : CE = canon à électrons ; SE = source d'évaporation ; SX = source et détecteurs de rayons X mous ; C = cache mobile ; Q = cristal de quartz ; ER = écrans refroidis.

2 - 2 Système de pompage :

Il comporte une pompe à membrane, deux pompes à sorption et une pompe cryogénique.

La pompe à membrane sert à faire un pré-vidage pour ne pas saturer les pompes à sorption qui assurent un vide primaire suffisant

.../...

($\simeq 2.10^{-2}$ Torr $\simeq$ 2,66 Pa) pour amorcer la pompe cryogénique, qui nous permet d'atteindre une pression de 8.10^{-6}Pa ($\simeq 6.10^{-8}$ Torr). En refroidissant les pièges avec de l'azote liquide on diminue la pression d'un facteur 10. Une lampe d'étuvage incorporée au bâti permet de dégazer l'installation. Néanmoins, certains matériaux du compteur de photons du réflectomètre ne peuvent être chauffés au-delà de 100° C environ. Nous disposons donc d'un écran refroidi à l'azote liquide qui permet d'accroître la vitesse de pompage - notamment de la vapeur d'eau résiduelle - pendant les évaporations.

La pompe cryogénique a une grande vitesse de pompage. La tête froide atteint la température de 20 K en 1 h 45 mn et quelques heures suffisent pour avoir une pression de 8.10^{-6} Pa dans l'enceinte sans étuver. Elle présente cependant l'inconvénient de ne pas supporter les évaporations de carbone qui diffuse partout dans l'enceinte et qui altère le fonctionnement de la pompe en diminuant le pouvoir réflecteur des écrans protecteurs de la tête froide. Ce problème devra être résolu en adaptant des caches et des pièges refroidis à 77 K pour protéger le corps de la pompe.

Lors du changement de pompe secondaire, nous avons testé une pompe turbo-moléculaire, qui permettait une descente en vide extrêmement rapide mais qui ne convenait malheureusement pas à notre montage, l'huile de la pompe primaire venant polluer la surface des échantillons.

2 - 3 Canon évaporant :

Le système d'évaporation comporte 4 creusets qui peuvent être positionnés successivement sous le faisceau d'électrons du canon fixe. Deux de ces creusets sont réservés aux éléments lourd et léger de la multicouche, les deux autres ont plusieurs utilisations possibles. Ils permettent de changer les matériaux de l'empilement sans avoir à recharger les creusets qui sont difficiles d'accès, ou de réaliser

.../...

un film entre le support et la multicouche. Cette strate supplémentaire peut améliorer l'accrochage et la rugosité du corps lourd sur le verre, ou si elle possède un gradient d'épaisseur, modifier la surface du support comme nous le verrons plus loin dans le cas de l'asphérisation des miroirs du télescope qui fonctionnera à 30,4 nm de longueur d'onde.

Le bloc creuset en cuivre constitue l'anode du canon, il est refroidi par une circulation d'eau. Le filament du canon émet par effet JOULE des électrons qui sont déviés de 180° vers le creuset central par le champ magnétique d'une bobine. Il est alimenté par une haute tension négative variable, utilisée en général à 7 kV. Le courant d'émission ne dépasse pas 400 mA, soit une puissance de 2,8 kW.

Dans le cas d'éléments qui se subliment on utilise un balayage du faisceau d'électrons sur le creuset pour évaporer uniformément le bloc de matériau.

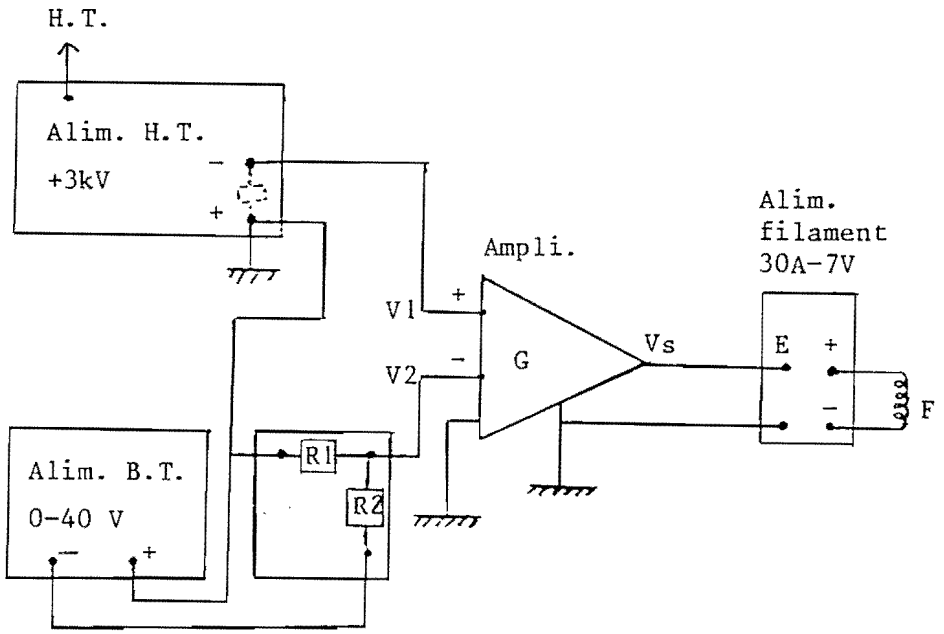
2 - 4 Système de contrôle :

Le système de contrôle comporte une source de rayons X et un détecteur placés dans l'enceinte à vide, qui peuvent pivoter autour de deux axes parallèles. La possibilité de faire varier l'angle d'attaque de la multicouche de 16 à 40° grâce à la mobilité du porte échantillon et du système de contrôle, permet de réaliser une large gamme de période.

a) La source de rayons X mous :

C'est un canon à électrons dont l'anticathode, qui est amovible, est portée à une haute tension de 3 kV. Le filament circulaire est en tungstène thorié, matériau possèdant un haut point de fusion et ne se déformant pas lors de l'échauffement. Nous travaillons avec un courant d'émission de 3 à 20 mA, le but n'étant pas d'évaporer la cible mais d'émettre des rayons X. Le courant d'émission est régulé pour être stable pendant les évaporations (fig. 22).

.../...



R1=10 Ω F=filament

R2=1 kΩ E=entrée de la commande du filament

Vs = G.(V1-V2)

Fig. 22 : Schéma du dispositif électronique de régulation du courant d'émission.

Nous utilisons une anticathode de carbone ou de nitrure de bore afin d'exciter les raies K de ces corps. Cela nous permet de contrôler la fabrication des multicouches avec une longueur d'onde de 4,47 nm pour le carbone ou 6,76 nm pour le bore. Le fait de pouvoir modifier la longueur d'onde de contrôle augmente le domaine des périodes que nous pouvons réaliser, malheureusement le choix des raies est limité par les caractéristiques du détecteur (transparence de la fenêtre, sensibilité du compteur).

b) Le détecteur :

C'est un compteur proportionnel à flux gazeux, utilisant un mélange de 90 % d'argon et de 10 % de méthane.

La chambre d'ionisation est séparée de l'enceinte par une membrane en macrofol de 2 µm d'épaisseur, renforcée par une grille métallique

.../...

à 80 % de transmission, pour supporter la différence de pression entre l'enceinte à vide et le circuit du compteur ($\sim$ 75 Torrs $\sim 10^4$ Pa). Le rendement du compteur est très sensible à la pression dans le compteur, nous travaillons avec une pression stabilisée entre 70 et 100 Torrs d'argon-méthane.

Les impulsions sont transmises à un préamplificateur puis à un amplificateur. Le signal est ensuite envoyé à la fois sur un analyseur multicanal et sur une fenêtre électronique. L'analyseur permet de visualiser la courbe de distribution en énergie des photons détectés, et ainsi de régler les bornes de la fenêtre électronique pour éliminer le bruit de fond et les raies de fluorescence, et sélectionner le signal utile qui est transformé par un compteur d'impulsions en signal analogique proportionnel au flux de photons détectés dans une bande d'énergie déterminée.

La variation de ce signal transmis à un enregistreur, représente la variation de la réflectivité de la multicouche en cours de fabrication.

c) Précision de la méthode :

Dans le montage ci-dessus, les trois éléments (source, échantillon , détecteur) sont fixes sur trois supports indépendants, qui doivent être déplacés séparément. En conséquence, l'incertitude sur la valeur réelle de l'angle de contrôle θ_c est de l'ordre de 1 degré, soit pour la précision sur la valeur de la période d :

$$\frac{\Delta d}{d} = - \frac{\Delta \theta}{tg\theta}$$

Pour $\theta = 20°$, on obtient $\frac{\Delta d}{d} = \frac{4,8}{100}$. Cette incertitude est trop importante pour les applications dans lesquelles λ_u et θ_u sont fixés à l'avance. Ainsi, en règle générale, on fabrique une première multicouche dont la période d_1 est mesurée par réflexion rasante de rayons X. On

.../...

effectue alors une correction $\Delta\theta = -\left(\frac{d_1 - d_o}{d_o}\right)$. tg θ du règlage initial avant de procéder à la fabrication de l'échantillon définitf. En moyenne, la précision atteinte est alors de l'ordre de 1 %.

2 - 5 Support des multicouches :

Nous utilisons principalement du float glass (F.G.)comme support plan pour nos empilements.

Le F.G. est obtenu en coulant le verre sur un bain d'étain en fusion. C'est un substrat de planeïté moyenne et de très bonne rugosité ($\sigma \simeq 0{,}4$ nm).

Les supports des miroirs sphériques sont réalisés en silice polie dont la rugosité ($\sigma \simeq 0{,}6$ nm) est légèrement plus élevée que celle du float glass.

Avant d'être montés sur le porte échantillon les substrats sont nettoyés. Il est important de faire disparaître toute trace de graisse, de pâte à polir et de poussière. On utilise pour cela du carbonate de calcium très pur en suspension dans du R.B.S.,qui est une lessive liquide. Les substrats sont frottés à l'aide de coton hydrophile, puis rincés avec de l'eau désionisée et séchés par centrifugation.

3 - Avantages et inconvénients de la méthode :

3 - 1 Avantages de la méthode :

Le premier avantage de cette méthode est de suivre et de contrôler l'épaisseur des matériaux pendant la fabrication de l'échantillon et non de faire une mesure après la réalisation, lorsqu'on ne peut plus intervenir. Avec cette méthode on obtient des couches régulières et reproductibles. Nous ne sommes plus tributaires des instabilités et dérives thermiques du quartz,qui ne sert plus qu'à règler la vitesse d'évaporation.

Les épaisseurs des corps lourd et léger dans l'empilement obtenues

.../...

par notre méthode de réalisation sont fixées par la procédure expérimentale de la courbe de réflectivité. Elles ne sont pratiquement jamais égales aux valeurs optimales, déterminées par calcul pour la longueur d'onde d'utilisation. On joue alors sur l'ordre de réalisation, lorsqu'on peut, pour s'en approcher le plus possible.

La méthode présente l'avantage de minimiser les erreurs. Si l'on dépose trop de matériau lourd, l'épaisseur d'élément léger sera automatiquement diminuée et inversement. Le signal est directement fonction de l'épaisseur de la couche. Après une erreur l'empilement peut être perturbé sur plusieurs bicouches mais toujours de manière à retrouver la période initiale.

Ce contrôle permet d'avoir pendant la fabrication de la multicouche une idée de la qualité de l'empilement. En effet, la méthode est très sensible à la rugosité, qui produit une baisse de la valeur moyenne du signal et du contraste des oscillations.

3 - 2 Inconvénients de la méthode :

Les premières bicouches de l'empilement ne sont pas strictement périodiques : l'épaisseur du corps lourd va en décroissant à partir du support, car le rayonnement pénètre dans le substrat et la méthode corrige les épaisseurs pour optimiser le miroir, mais pour la longueur d'onde de contrôle. Il serait donc nécessaire de réaliser un nombre de strates (N) suffisant pour que l'épaisseur moyenne devienne constante afin que le rayonnement de l'utilisateur n'atteigne plus les premières couches. En fait, nous avons vu que la croissance de la rugosité avec le nombre de bicouches imposait une limite supérieure ; d'autre part, la variation d'épaisseur est relativement faible, et affecte essentiellement la première couche de matériau lourd, ce qui modifie très peu les performances de l'empilement en comparaison des valeurs optimales.

.../...

Une autre conséquence facheuse liée à la longueur d'onde de fabrication est que l'on ne peut pas contrôler le dépôt d'un matériau avec la raie K_α de ce même matériau, car le corps est alors très transparent et le contraste des oscillations du signal est très faible. Ainsi, on ne peut pas faire de dépôt de carbone et de bore en contrôlant respectivement avec les raies K_α du carbone et du bore. Par contre, si le matériau est trop absorbant, on ne peut pas réaliser de grandes périodes qui nécessitent de fortes épaisseurs de matériau lourd car le contraste des oscillations décroît très rapidement.

Ce bâti peut être amélioré notamment en utilisant un deuxième canon à électrons de manière à maintenir en permanence les deux matériaux de la multicouche en régime d'évaporation. Cela supprimerait les temps morts qui favorisent la contamination des couches ultra-minces par les gaz résiduels de l'enceinte et permettrait de garder les vitesses de dépôt constantes, ce qui est important pour la qualité des couches et du contrôle. Un système de régulation de la vitesse de dépôt contrôlée par quartz est actuellement en cours de réalisation.

Après la réalisation des empilements, il faut déterminer leurs caractéristiques : épaisseurs, rugosités, réflectivité, bande passante. C'est ce que nous allons développer dans le chapitre suivant.

CHAPITRE IV

CARACTÉRISATION DES MULTICOUCHES APRÈS LA FABRICATION.

IV - CARACTERISATION DES MULTICOUCHES APRES LA FABRICATION :

Dans le chapitre II, nous avons vu l'étude par spectroscopie Auger et par mesure de résistance pendant la croissance des couches, il s'agit maintenant de caractériser les échantillons après leur sortie de l'enceinte de fabrication.

Il est évident que la meilleure méthode de caractérisation consisterait à mesurer directement la réflectivité de l'empilement pour la longueur d'onde, l'angle d'incidence et éventuellement la polarisation pour lesquels il a été conçu. Si une telle mesure est effectivement réalisable grâce à un montage qui utilise le rayonnement synchrotron à LURE, nous verrons qu'elle ne peut être effectuée systématiquement pour chaque échantillon, pour des raisons indépendantes de la méthode elle-même. Il est donc nécessaire d'avoir un autre moyen de contrôle d'accès plus aisé à proximité du bâti d'évaporation. Dans notre cas nous avons utilisé la réflexion de rayons X rasants, mise en oeuvre à l'I.O. depuis de nombreuses années, et qui se prête bien à la caractérisation des milieux stratifiés tels que les multicouches planes.

1 - Goniomètre de précision :

Les échantillons sont contrôlés en réflexion spéculaire rasante à la longueur d'onde de 0,154 nm sur un goniomètre de précision. Cette technique et l'exploitation des résultats ont été adaptées à la caractérisation des multicouches par J. CORNO, L. NEVOT (23) et B. PARDO.

Cette méthode interférentielle est non destructrice et très précise ; elle permet de déterminer la période de l'empilement, le rapport d'épaisseur des matériaux dans la bicouche élémentaire ainsi que les rugosités des interfaces. L'épaisseur des échantillons étudiés ne doit pas excéder 400 nm dans le cas le plus faborable, c'est-à-dire pour un élément très transparent.

1 - 1 Principe de la mesure :

On envoie sur l'échantillon étudié un faisceau monochromatique et pratiquement parallèle de rayons X (λ = 0,154 nm) sous une incidence rasante.

.../...

On mesure les variations de l'intensité réfléchie spéculairement ($\theta_1 = \theta_2$) par l'échantillon en fonction de l'angle d'attaque θ.

L'indice étant inférieur à l'unité, quand l'angle θ est suffisamment petit, le faisceau incident est complètement réfléchi par la surface libre de la couche. Quand θ augmente et dépasse l'angle critique θ_c, que l'on appelle limite de réflexion totale, une partie du faisceau incident pénètre dans l'échantillon. Les faisceaux réfléchis par les deux interfaces parallèles interfèrent et on observe des oscillations de l'intensité détectée en fonction de θ. Les maxima correspondant à des interférences constructives sont directement liés aux épaisseurs et aux indices des matériaux déposés par la relation :

$$2\,d\,.\sqrt{\sin^2\theta_k - \sin^2\theta_c} = k\,.\,\lambda \qquad (4.1)$$

$$\theta_c = 2\,\delta$$

$$n = 1 - \delta + i\,\beta$$

où l'ordre d'interférence k désigne en général un nombre entier (il est demi-entier pour une couche simple, plus dense que le substrat).

Dans le cas d'une couche homogène, les franges d'interférences sont dites de KIESSIG. La fig. 23 donne un exemple pour un film de niobium de 60,2 nm d'épaisseur. L'analyse rapide de la courbe expérimentale fournit l'épaisseur et l'indice du matériau pour la longueur d'onde de 0,154 nm.

.../...

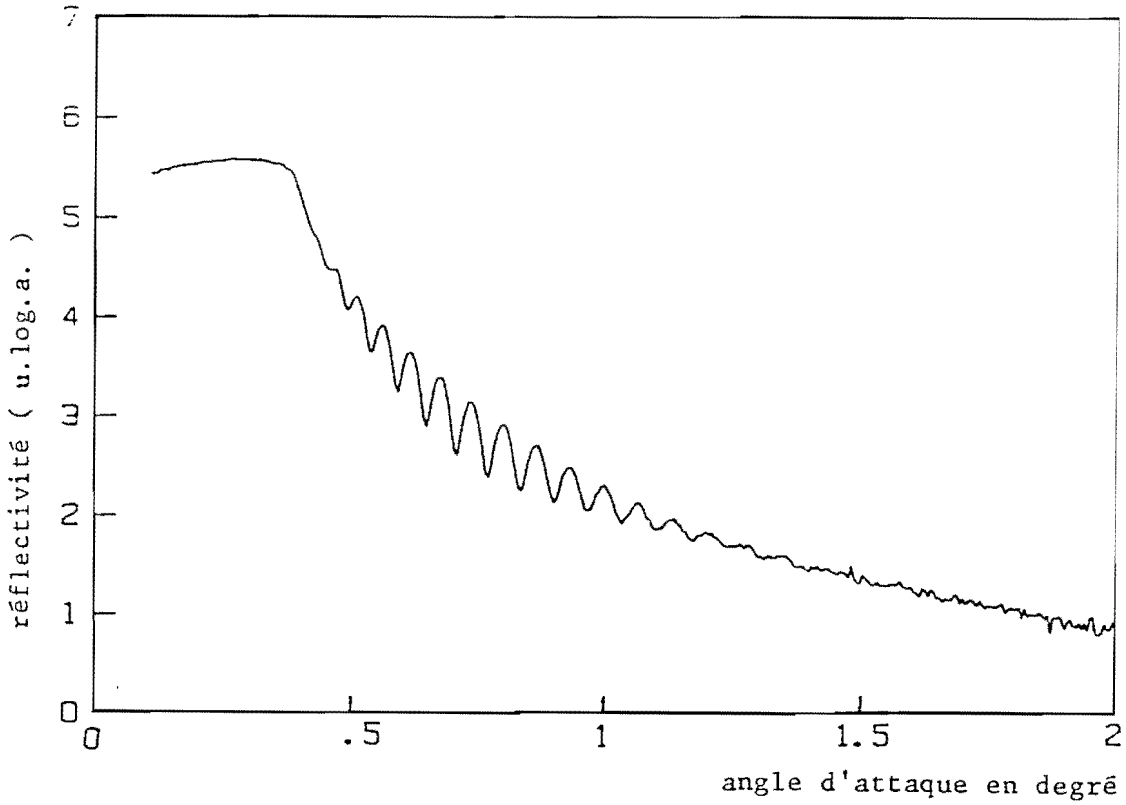


Fig. 23 : Réflectivité en incidence très rasante d'une monocouche de noibium de 60,2 nm d'épaisseur (λ = 0,154 nm).

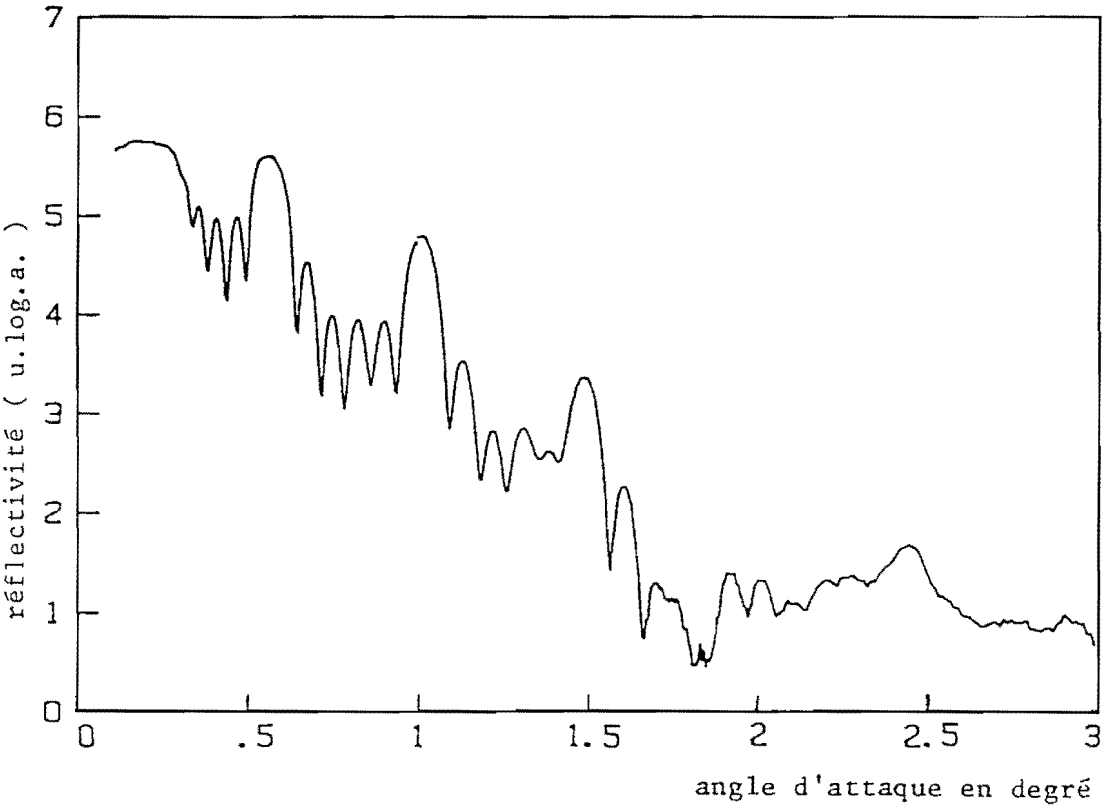


Fig. 24 : Réflectivité en incidence très rasante d'une multicouche WRe/Si (période : 9,1 nm) , λ = 0,154 nm.

Pour une multicouche, les interférences à ondes multiples permettent d'observer des pics de BRAGG, qui fournissent la période moyenne. La limite de réflexion totale détermine l'indice moyen de l'empilement. Entre les pics principaux, (N-2) pics secondaires apparaissent dans le cas d'une multicouche comportant N plans réflecteurs. L'intensité de ces pics est très sensible à la régularité des strates dans l'empilement. La fig.24 montre la courbe obtenue dans le cas d'une multicouche de tungstène-rhénium/silicium. On voit les trois premiers pics de BRAGG séparés par quatre pics secondaires, l'empilement comportant six plans réflecteurs de WRe et cinq couches séparatrices de silicium. Le quatrième pic de BRAGG est écrasé car l'épaisseur du matériau lourd est voisine du quart de la période. Le cinquième pic réapparaît ensuite, mais il est atténué à cause de la rugosité des interfaces.

1 - 2 Dispositif expérimental :

Le schéma synoptique de l'installation est donné par la fig. 25. La source de rayons X est un tube à anticathode de cuivre alimenté sous 40 kV et 10 mA. Le tube est refroidi par une circulation d'eau régulée en débit et en température. Un monochromateur de quartz plan permet de séparer les raies K_α et K_β du cuivre. Le montage comporte trois fentes F_1, F_2 et F_3 de 2 cm de hauteur et de quelque dizaines de microns d'ouverture, qui permettent de limiter le faisceau utile. La fente F_1 disposée à une vingtaine de cm du monochromateur sert à isoler la raie $K_{\alpha 1}$ en supprimant la raie $K_{\alpha 2}$. On obtient ainsi un faisceau monochromatique ($\lambda = 0,154$ nm) : F_1 et F_3 doivent avoir la même ouverture pour pouvoir travailler en faisceau sensiblement parallèle ; la largeur de F_3 détermine la résolution de l'appareil.

.../...

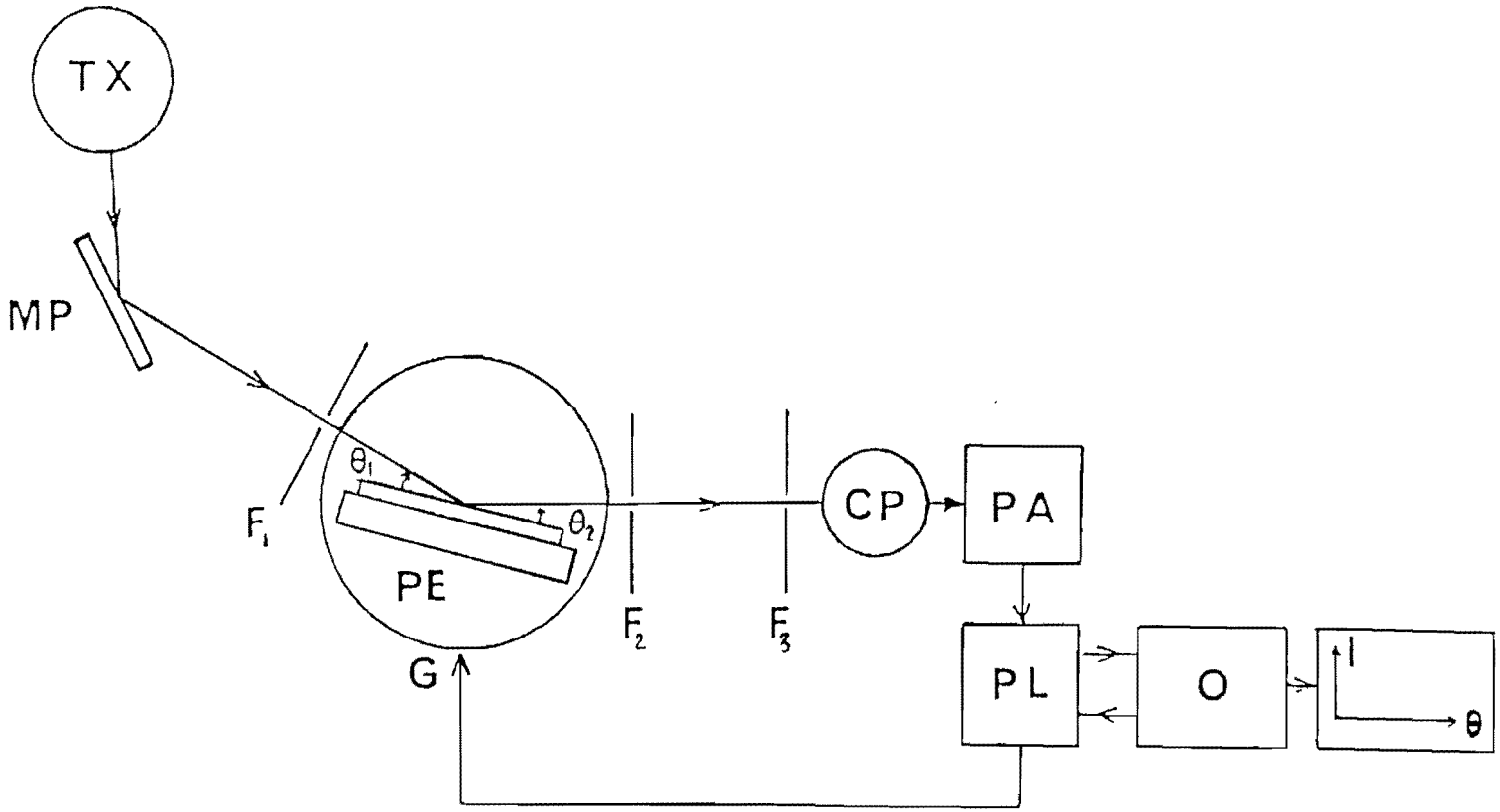


fig.25 : schéma du goniomètre de précision

TX : tube à rayons X MP : monochromateur plan

G : goniomètre F_1, F_2, F_3 : fentes

PE : platine porte-échantillon

CP : compteur proportionnel PA : préamplificateur

PL : périphérique de liaison avec l'ordinateur O

Sur ce goniomètre l'échantillon est fixe, il est maintenu sur la platine porte-objet par aspiration. Etant éclairé sous incidence fortement rasante, il doit avoir une très bonne planéïté et une aire de quelques cm^2 pour recueillir tout le faisceau incident au voisinage de la réflexion totale.

La source et le détecteur sont mobiles grâce à deux moteurs pas à pas asservis par ordinateur. Cet appareil permet une exploration angulaire de 0 à 4°, 1 pas moteur correspondant à un angle de 0,25 seconde d'arc.

La chaine électronique de détection est du même type que celle utilisée sur l'installation de fabrication, mais le compteur proportionnel à flux gazeux utilise un mélange de xénon et de méthane qui a un meilleur rendement pour la longueur d'onde de travail du goniomètre que le mélange argon-méthane. Devant la fenêtre d'entrée du compteur on dispose d'un barillet d'écrans absorbants qui permettent de limiter entre 100 et 1000 le nombre de coups/seconde détectés pour travailler dans le domaine linéaire de la courbe de réponse du détecteur, dont le bruit de fond est faible.

L'acquisition de données se fait par un micro-ordinateur (HP 85) qui gère l'ensemble des appareils de commande et de comptage.

1 - 3 Analyse des résultats :

Un dépouillement approfondi des courbes expérimentales doit prendre en compte de nombreux paramètres : l'indice, l'épaisseur et la rugosité de chaque strate. Pour une multicouche composée de 5,5 périodes il faut ainsi ajuster une trentaine de variables pour espérer obtenir une bonne correspondance entre les courbes théoriques et expérimentales :

- La position des pics de BRAGG fournit la valeur moyenne de la période.
- La limite de réflexion totale donne l'indice moyen de la couche ; si les indices respectifs des deux matériaux sont connus, on peut

.../...

en déduire le rapport d'épaisseur des deux couches élémentaires qui constituent une période de l'empilement.

- L'amplitude des oscillations dépend des indices des matériaux et des rugosités interfaciales.
- La décroissance de la valeur moyenne est fonction des rugosités.
- Le contraste des pics secondaires dépend de la régularité des strates.

La longueur d'onde utilisée pour la caractérisation (0,154 nm) étant très petite, cette méthode est extrêmement sensible à la rugosité des surfaces, que l'on modélise par l'écart type d'une distribution gaussienne. On peut évaluer des rugosités jusqu'à un maximum de 4 nm en valeur quadratique dans le cas d'un dioptre simple mais pas dans celui d'un empilement, les franges d'interférences étant complètement détruites.

La réflectomètrie de rayons X rasants ne permet d'identifier les composés que par l'intermédiaire de l'indice de réfraction qui pour les longueurs d'onde utilisées est fonction de la densité électronique moyenne du milieu donc de la compacité et de la nature des éléments. Une étude par spectroscopie AUGER pendant la croissance est donc utile pour identifier les éléments en présence. Ainsi on observe que les métaux dans les multicouches sont souvent oxydés, et ont en conséquence une densité plus faible que celle du métal pur. On peut également étudier l'évolution des couches après la mise à l'air et notamment la croissance des couches superficielles d'oxydes.

Quelques minutes suffisent pour obtenir les valeurs moyennes de la période et de l'indice d'une multicouche à partir de la courbe expérimentale mais un dépouillement approfondi nécessite souvent plusieurs jours de travail.

.../...

2 - Caractérisation directe des multicouches en X-UV :

L'anneau de stockage d'Orsay (A.C.O.) permet grâce à des monochromateurs adaptés de faire varier la longueur d'onde de manière continue dans le domaine qui nous concerne. Il suffit alors de disposer d'un réflectomètre sous vide pour contrôler les performances des multicouches dans le domaine d'utilisation. On mesure la réflectivité en fonction de la longueur d'onde, donc la réflectivité maximale et la bande passante du réflecteur monochromateur sous une incidence donnée. Ce test est le plus complet car il permet de vérifier les propriétés optiques de l'empilement dans des conditions bien spécifiées, notamment en ce qui concerne la polarisation des photons incidents. Pour chaque longueur d'onde on obtient le pouvoir réflecteur de la couche en mesurant le flux direct avant et après la mesure du flux réfléchi afin de tenir compte de la décroissance de l'intensité du rayonnement synchrotron en fonction du temps.

L'appareillage utilisé a été mis au point par J.P. DELABOUDINIERE au Laboratoire de Physique Stellaire et Planétaire du C.N.R.S. à VERRIERES-le-BUISSON. Il peut fonctionner avec le rayonnement synchrotron pendant les périodes réservées ou avec des lampes qui fournissent un spectre de raies discrètes.Dans ce dernier cas on trace les courbes de réflectivité en fonction de l'angle d'incidence, pour plusieurs longueurs d'onde qui encadrent la longueur d'onde d'utilisation afin de pouvoir interpoler les résultats.

De telles mesures effectuées systématiquement sur des échantillons comparables dont les caractéristiques seraient déterminées avec précision, par exemple par réflexion de rayons X rasants, pourraient permettre d'évaluer les indices des matériaux en couches minces dans le domaine X-UV.

.../...

Nous allons dans la suite donner des exemples d'applications des différentes méthodes de caractérisation que nous venons de présenter, à des matériaux ou à des couples de matériaux sélectionnés pour leur intérêt potentiel, du fait de leurs indices pour la réalisation de monochromateurs-réflecteurs en X-UV. Nous nous attacherons plus particulièrement au domaine de longueurs d'onde supérieures à 10 nm, pour lesquelles il existe des applications en astrophysique et en physique des plasmas créés par laser.

.../...

CHAPITRE V

MIROIRS INTERFÉRENTIELS POUR λ_U = 30,4 NM.

V - MIROIRS INTERFERENTIELS POUR λ_u = 30,4 nm

1 - Application à l'astrophysique :

L'astronomie spatiale est un domaine très intéressé par les développements des optiques X-UV comportant des multicouches.

Nous avons procédé à une étude pour la longueur d'onde de 30,4 nm en vue de réaliser les miroirs d'un télescope de RITCHEY-CHRETIEN (24) en collaboration avec le Laboratoire de Physique Stellaire et Planétaire du C.N.R.S, à VERRIERES-le-BUISSON.

Dans le cadre du projet S.O.H.O. (25), ce télescope devrait être embarqué sur un satellite. Il permettra d'étudier la couronne solaire par l'intermédiaire de la raie à 30,4 nm de l'hélium II (He^{++}), qui se forme dans la chromosphère.

Il se compose de deux miroirs de surfaces à génératrices hyperboliques, utilisés en incidence quasi-normale. Le schéma du système optique est donné par la fig. 26. Le miroir primaire est concave et le secondaire convexe.

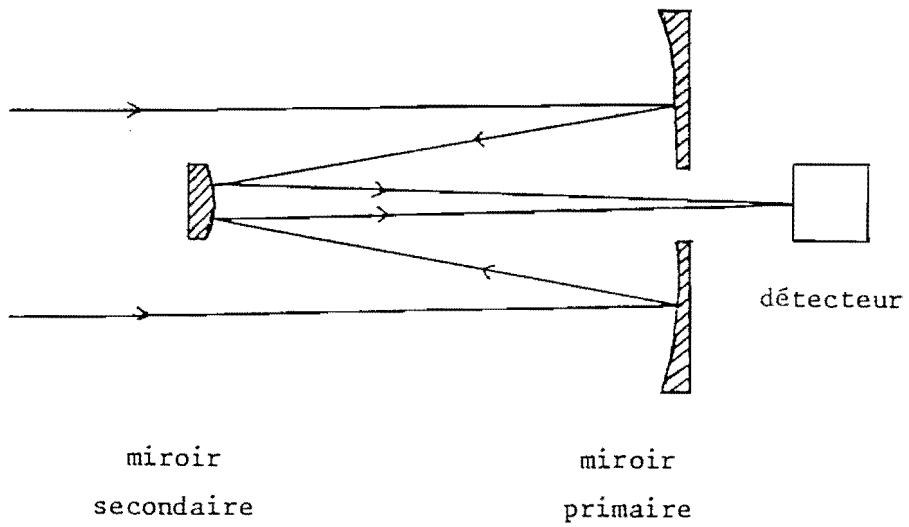


Fig. 26 : Schéma optique des miroirs du télescope.

.../...

La génératrice hyperbolique des miroirs est donnée par l'équation :

$y^2 = 2\,rx - ex^2$

avec pour le miroir primaire : e = - 0,10699

r = 663,6275 mm

et pour le miroir secondaire :

e = - 4,111

r = 323,505 mm

Les paramètres du télescope sont les suivants :

- diamètre extérieur du miroir primaire : 76 mm
- diamètre du miroir secondaire : 28 mm
- distance primaire - secondaire : 225 mm
- distance primaire-foyer : 100 mm
- distance focale équivalente : 1 000 mm

La résolution de l'appareil sera limitée non pas par le système optique mais par le détecteur bidimensionnel dont chaque cellule a une résolution de 10 x 10 arc sec^2.

La réalisation du télescope comporte deux étapes. Compte tenu de la faiblesse de l'écart ($\lesssim$ 200 nm) entre l'hyperboloïde et une sphère, il a été décidé de fabriquer des supports sphériques dont le polissage pose moins de problèmes - tant pour la forme que pour l'état de surface - puis de transformes les portions de sphères en hyperboloïdes par des dépôts à gradient d'épaisseur radial (26). Ce problème étant résolu il reste à traiter les miroirs. Il faut sélectionner les matériaux et déterminer tous les paramètres optiques et géométriques de la multicouche (27).

2 - Asphérisation des supports des multicouches :

2 - 1 Choix du matériau pour réaliser la couche d'asphérisation :

La rugosité des couches minces de carbone étant faible, nous pensions utiliser ce matériau pour réaliser la couche d'asphérisation. Malheureusement, nous avons constaté qu'une couche de 200 nm d'épaisseur déposée sur un substrat

.../...

de verre se décollait partiellement du support, sous l'effet des tensions internes ; la formation de cloques régulières indique que la couche est comprimée. Nous avons ensuite testé le bore qui,dans les mêmes conditions, a donné des dépôts stables.

Une étude de la réflectivité pour λ_c = 4,47 nm et λ_c = 0,154 nm a permis de déterminer les caractéristiques des couches de bore que nous avons réalisées par évaporation sous vide.

La Fig. 27 montre l'évolution de la réflectivité (λ_c = 4,47 nm) mesurée pendant la croissance d'une couche de bore de 44,4 nm d'épaisseur finale ainsi que la simulation de cette courbe en utilisant la loi de rugosité représentée en pointillés. Les indices du bore et du verre étant très proches, l'effet de la couche superficielle du substrat principalement composée de SiO_2 est très important. Pour obtenir une bonne simulation de la courbe expérimentale de réflectivité nous avons dû considérer que le substrat est en SiO_2 , que les 6 premiers nm de matériau déposés sur le verre sont en bore et que le reste de la couche est composé de bore moins dense (B*). Cette variation de densité est significative d'une différence entre la croissance initiale du bore sur du verre et celle du bore sur du bore. La diminution de densité pourrait correspondre à une oxydation du matériau lors du dépôt. En fait, la spectroscopie d'électrons Auger montre que le bore ne fixe que très peu d'oxygène lors des évaporations ; nous concluons donc en faveur d'une porosité du matériau de l'ordre de 7,5 %. La rugosité a été calculée de manière à égaler approximativement la réflectivité mesurée avec la réflectivité calculée d'une couche de surface parfaitement plane multipliée par un facteur exponentiel de type DEBYE-WALLER ($R = R_o \exp\left[-(4\pi\sigma \frac{\sin\theta}{\lambda})^2\right]$). Cette simulation met en évidence une forte augmentation suivie d'une chute de la rugosité au début du dépôt, qui pourrait correspondre à une nucléation de petits amas sur la surface du substrat, suivie de la formation d'une couche continue. Au-delà de cette

.../...

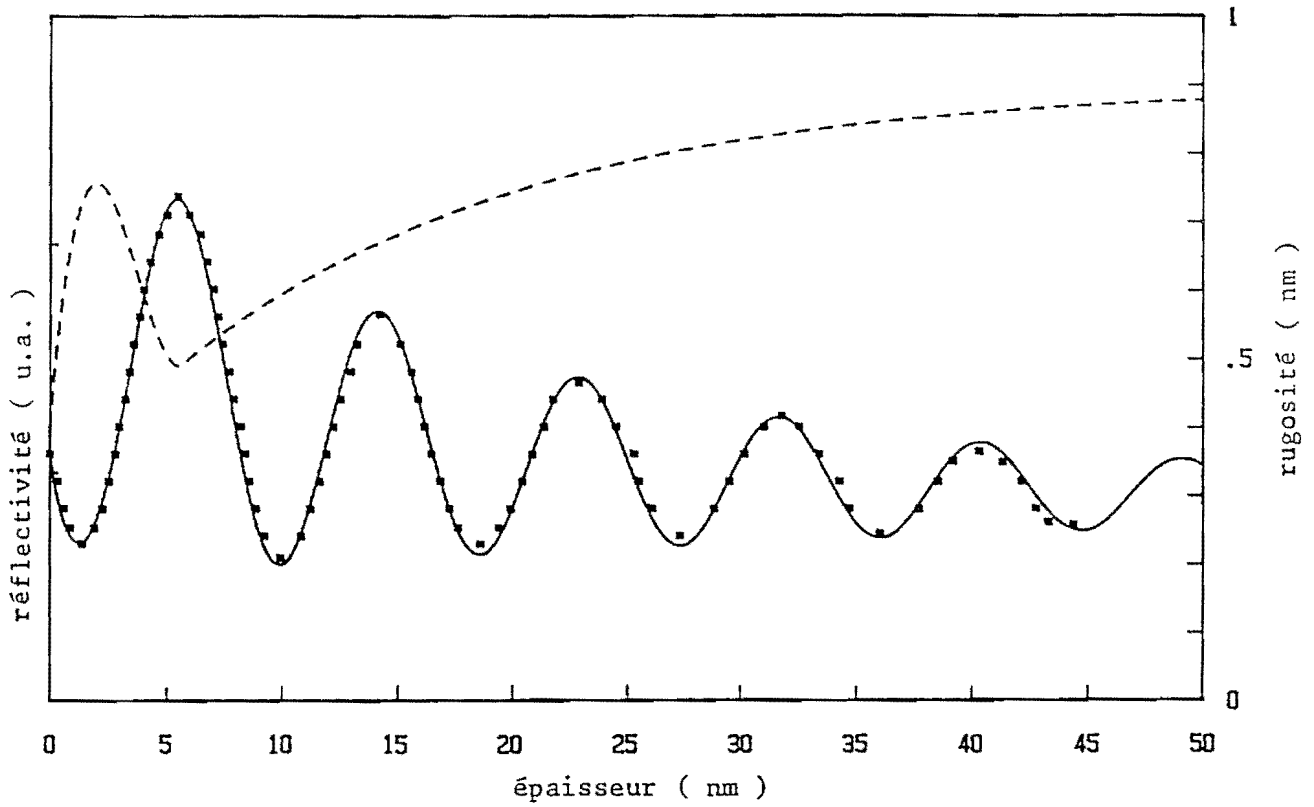


Fig. 27 : Réflectivité théorique (——) et expérimentale (▪▪▪) d'une couche de bore en fonction de l'épaisseur (λ_c = 4,47 nm, θ_{inc} = 74°)
– – – variation calculée de la rugosité en fonction de l'épaisseur.

	densité (g/cm^3)	épaisseur (nm)	n	k
SiO_2	2,2	∞	0,995075	$1,603\ 10^{-3}$
B	2,34	6	0,994678	$3,095\ 10^{-3}$
B *	2,165	44	0,995077	$2,863\ 10^{-3}$

zone la rugosité augmente régulièrement en fonction de l'épaisseur de bore déposée. Dans ce calcul la rugosité est modélisée par une cubique jusqu'à une épaisseur de 6 nm puis par une exponentielle tendant vers la valeur de 0,9 nm.

Cette couche de bore a ensuite été étudiée par réflexion de rayons X rasants (λ_c = 0,154 nm). La courbe de réflectivité mesurée en fonction de l'angle d'attaque et sa simulation sont représentées sur la Fig. 28. Les indices du bore et du verre étant voisins pour cette longueur d'onde, la limite de reflexion totale du bore n'est pas visible sur la courbe expérimentale; cela introduit une légère incertitude sur l'indice du matériau. La densité de la couche déterminée par la simulation correspond à l'oxyde B_2O_3 mais une étude par S.E.A. a montré que même après une mise à l'air une couche de bore ne fixe que très peu d'oxygène. Cette densité inférieure à celle du bore correspond à une porosité de 16 % du matériau , valeur supérieure à celle déterminée par la simulation de la réflectivité in situ à 4,47 nm (7,5 %) ; la différence provient de la précision des deux méthodes et de la valeur approximative de l'indice du bore déterminée pour λ_c =0,154 nm. Le brouillage des premières franges de KIESSIG est un effet de la couche superficielle du float glass d'environ 6,5 nm d'épaisseur (29). La simulation permet de déterminer l'épaisseur de la couche de bore : 4,47 nm et son paramètre de rugosité : 0,85 nm.

Les valeurs de rugosité de cette couche de bore (0,9 nm) obtenues par les simulations des courbes de réflectivité pour les deux longueurs d'onde concordent. L'étude par une méthode de diffusion de la lumière dans le visible (30) d'une couche de bore de 200 nm d'épaisseur environ a donné une valeur de rugosité comprise entre 0,8 et 1 nm, en bon accord avec les deux évaluations précédentes. Bien que plus forte que celle du float glass (0,4 nm) cette rugosité semble acceptable au premier abord pour la couche d'asphérisation. La perte de réflectivité calculée d'après le facteur

.../...

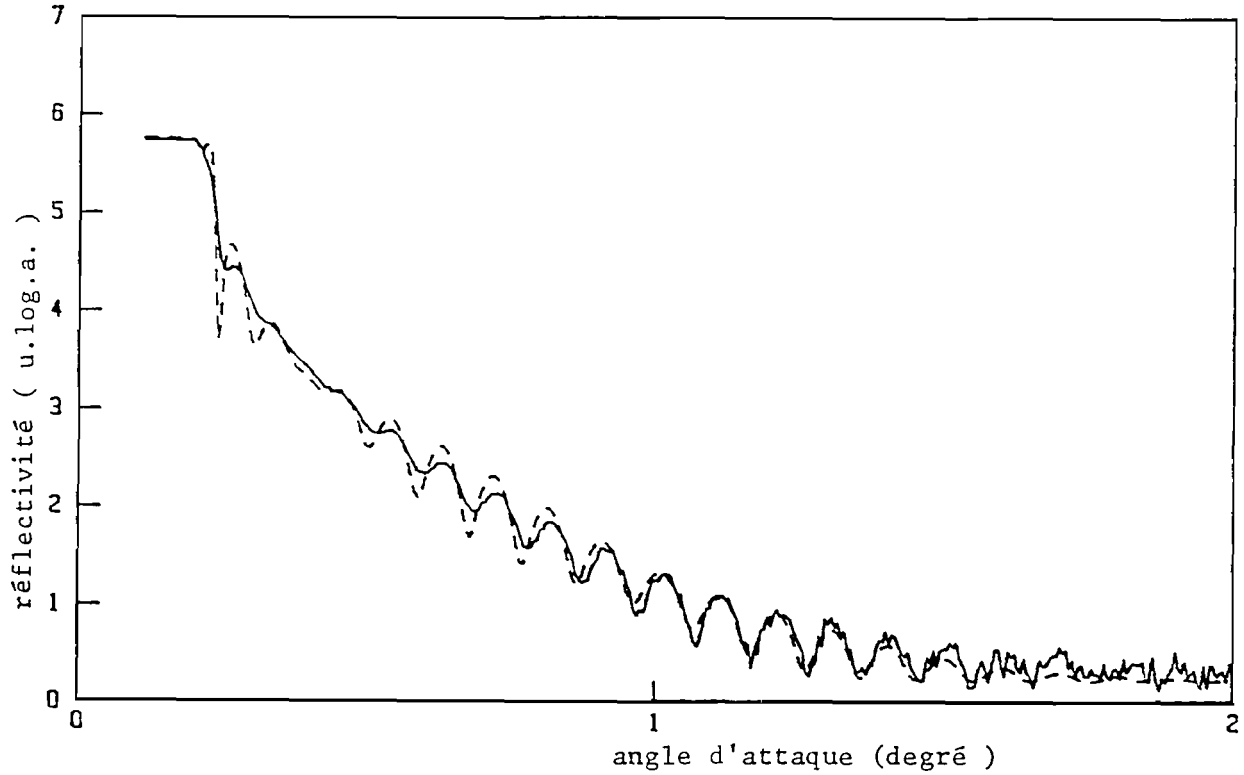


Fig. 28 : Réflectivité théorique (----) et expérimentale (——)
en incidence très rasante d'une couche de bore (λ_c = 0,154 nm).

	n	k
"B"	0,9999942	0,019 10^{-6}
Couche sup. du F.G.	0,999993	0,1 10^{-6}
F.G.dans la masse	0,9999919	0,12 10^{-6}

.../...

DEBYE-WALLER pour la longueur d'onde d'utilisation (30,4 nm) et en incidence normale est donnée dans le tableau ci-dessous :

σ(nm)	R/Ro
0,4	0,97
0,8	0,90
1	0,84

2 - 2 Test de la couche d'asphérisation :

a) Principe du test :

Nous avons choisi le bore comme matériau pour l'asphérisation car il adhère bien sur le verre et sa rugosité est relativement faible. Cependant, il nous fallait vérifier que la multicouche a une bonne adhérence sur la couche d'asphérisation et que la présence du bore ne perturbe pas trop l'empilement.

Pour faire cette étude nous avons déposé simultanément sur un support de float glass nu et sur un support de float glass recouvert d'une couche épaisse de bore (∿ 200 nm) une multicouche composée de matériaux susceptibles d'être utilisés pour la réalisation des miroirs du télescope. Nous avons déposé 5 couches réflectrices en hafnium séparées par 4 couches de bore. La période de cet empilement n'est pas adaptée à la longueur d'onde de 30,4 nm mais cela n'a pas d'importance pour l'étude de la stabilité de l'empilement avant et après exposition au rayonnement solaire ; nous ne nous intéressons pas pour l'instant à la réflectivité du miroir.

Les deux échantillons obtenus ont été contrôlés en réflexion spéculaire rasante à la longueur d'onde de 0,154 nm.

.../...

b) Analyse des résultats obtenus pour λ_c = 0,154 nm :

Les courbes de réflectivité en fonction de l'angle d'attaque sont représentées sur la fig. 29 pour les deux empilements. On remarque un décalage progressifdans la position des pics, en effet les deux multicouches bien que réalisées simultanément n'ont pas tout à fait la même période : 12,84 nm pour celle déposée sur F.G. et 13,09 nm pour celle déposée sur couche de bore. Cette différence provient de l'inhomogénéité du faisceau évaporé (les échantillons étant fixes) et de la faible distance séparant les échantillons du creuset (50cm), distance insuffisante pour rendre négligeable l'effet du décentrement des substrats. La décroissance la plus rapide de l'intensité des pics est obtenue pour la multicouche déposée sur bore : cela indique que les rugosités interfaciales sont plus fortes pour cet empilement que pour celui déposé sur float glass. Malgré ces différences de rugosité les deux courbes montrent des pics principaux et secondaires très nets : les deux multicouches sont donc bien structurées.

Une simulation de la réflectivité pour λ_c = 0,154 nm a permis de quantifier l'accroissement de rugosité dû à la couche épaisse de bore. Les résultats sont donnés sur les figures 30 et 31.

La période des empilements n'est pas constante, l'épaisseur de la couche de corps lourd allant en diminuant à partir du support. L'épaisseur de la première couche de hafnium est parfaitement déterminée grâce à l'effet de modulation qu'elle produit sur la courbe de réflectivité (fig. 30), elle accentue le minimum visible pour un angle de 1,55° et augmente l'intensité des pics pour les angles supérieurs à cette valeur. Ce phénomène est souvent masqué par l'effet des rugosités.

Dans le cas de la multicouche déposée sur F.G. la rugosité des couches de hafnium est de 1 nm et celle des films de bore de 0,6 nm.

.../...

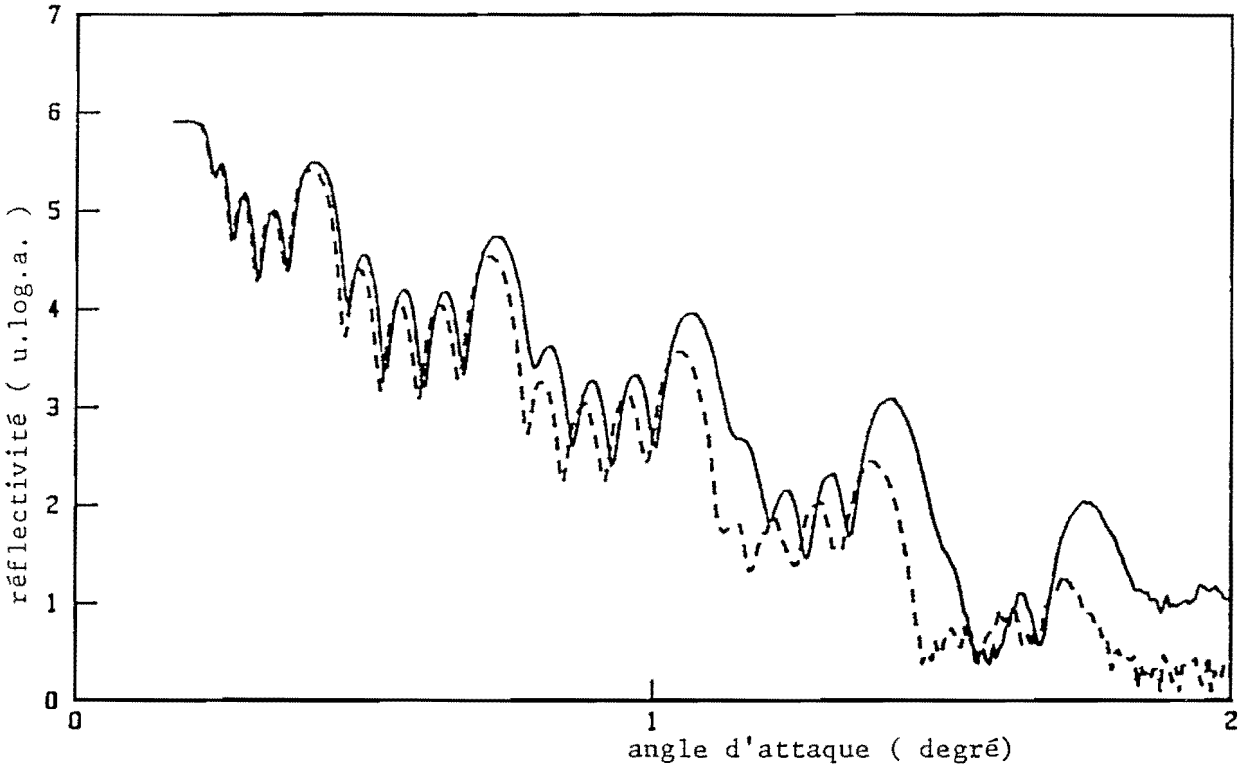


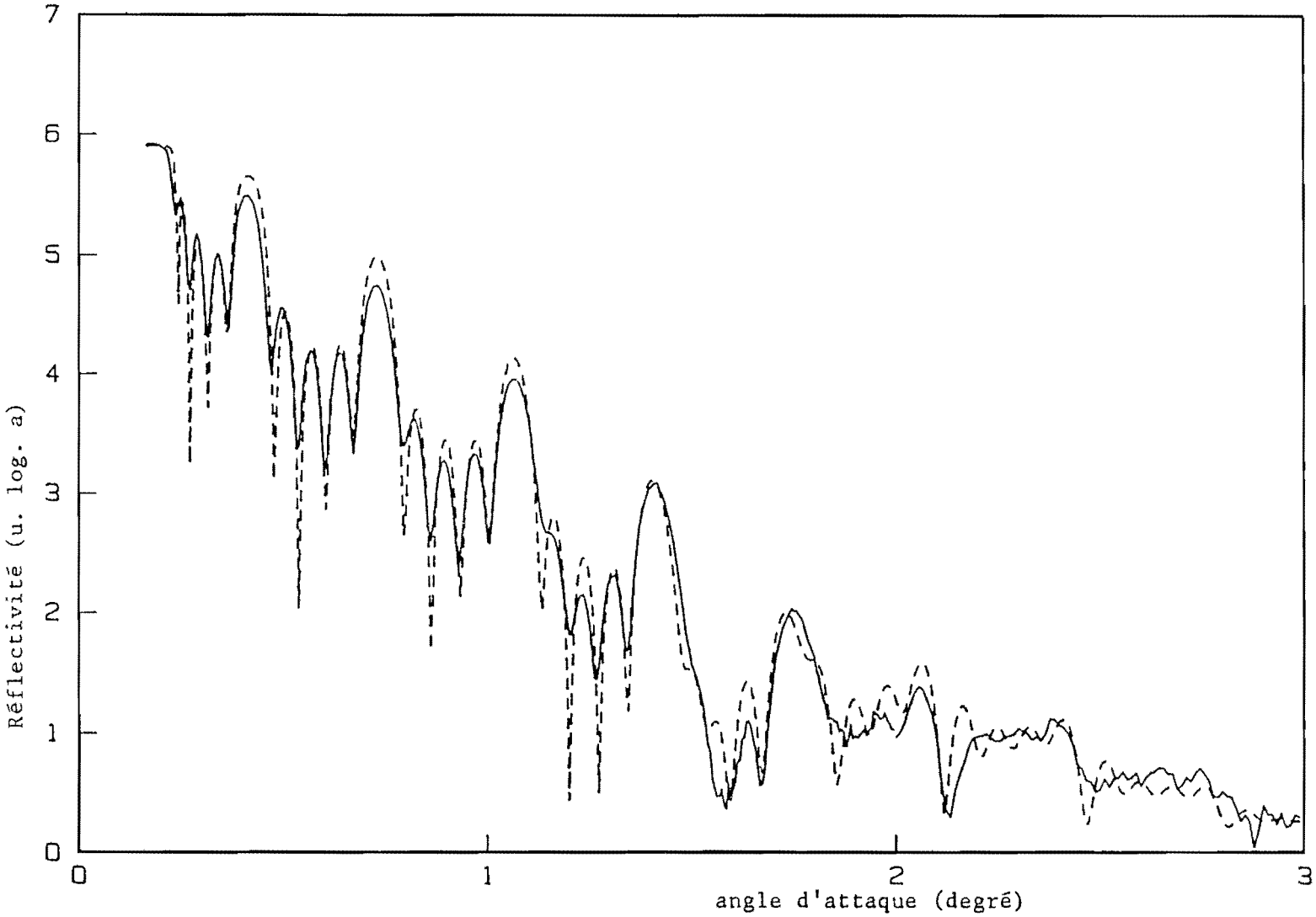
Fig. 29 : Réflectivité de deux empilements Hf/B en incidence très rasante (λ_c = 0,154 nm)

——— dépôt sur F.G.
------ " " couche épaisse de bore.

Seule la première couche de hafnium déposée sur verre se singularise par une faible rugosité de 0,55 nm. Pour la multicouche déposée sur couche de bore les rugosités interfaciales sont plus élevées : 1,4 nm pour le hafnium et 0,875 nm en moyenne pour le bore ; la première couche de corps lourd a la même rugosité que les autres.

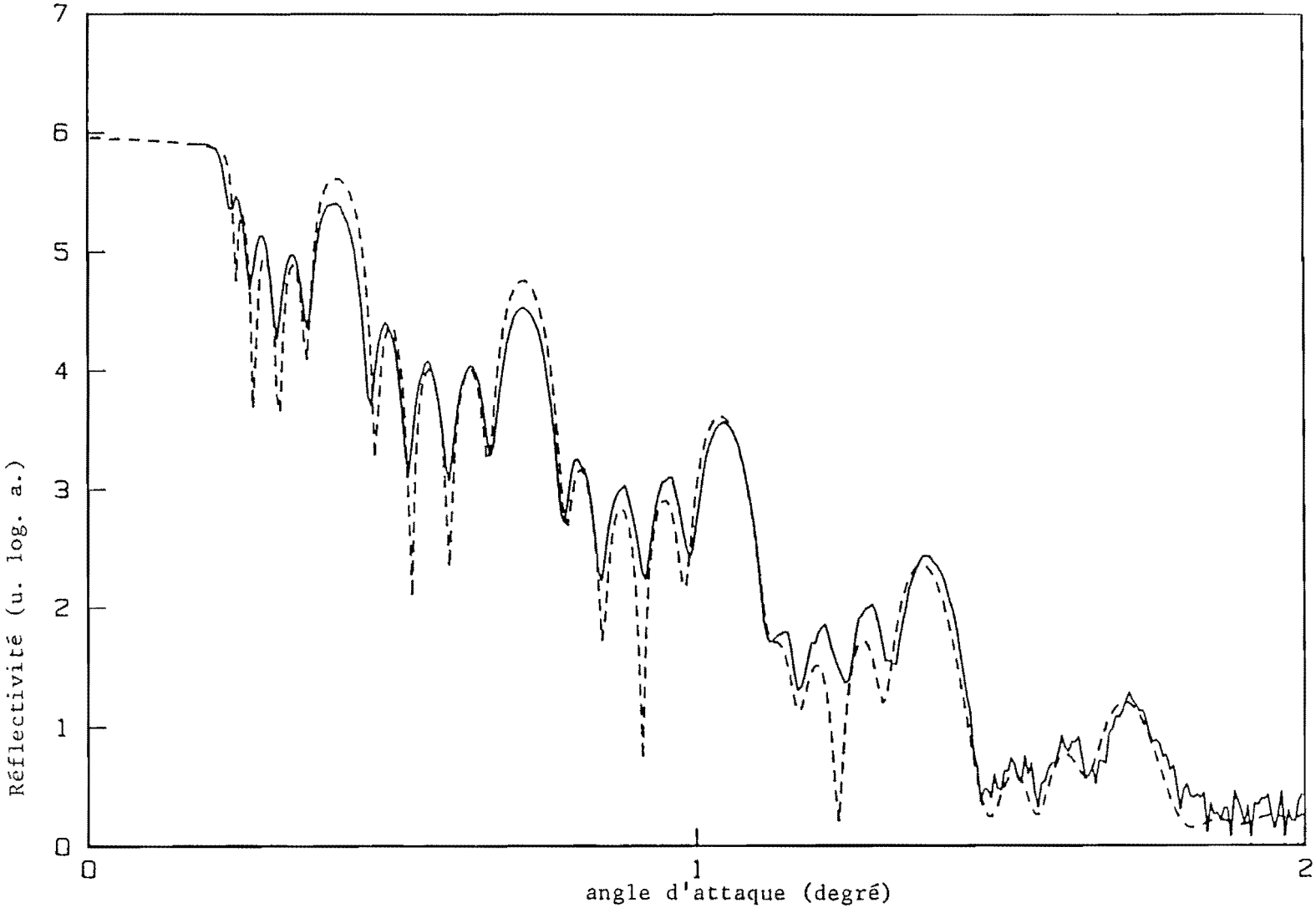
L'indice du bore a été obtenu lors de l'étude de la monocouche ; celui que nous déterminons ici pour le corps lourd correspond à un corps beaucoup moins dense que le hafnium pur (8,05 g/cm^3 au lieu de 13,3 g/cm^3). Une étude par S.E.A. (fig. 32) a montré que le hafnium est un "getter", les couches minces contiennent beaucoup d'oxygène et un peu de carbone. Les densités de HfC (12,2 g/cm^3) et de HfO_2 (9,7 g/cm^3) sont trop élevées pour correspondre à celle des couches de matériau lourd. Nous pouvons seulement constater que les couches

.../...



	e (nm)	σ (nm)
F. G.	∞	0,4
Hf 1	2,8	0,55
B 1	10,5	0,6
Hf 2	2,3	1
B 2	10,5	0,6
Hf 3	2,1	1
B 3	10,55	0,6
Hf 4	2	1
B 4	10,6	0,6
Hf 5	1,9	1

Fig. 30 : Réflectivité théorique (----) et expérimentale (——) en incidence très rasante d'une multicouche déposée sur support de float glass (λ_c = 0,154 nm).



	e (nm)	σ (nm)
F. G. + B	∞	1
Hf1	2,8	1,4
B1	10,75	0,8
Hf2	2,3	1,4
B2	10,75	0,85
Hf3	2,1	1,4
B3	10,8	0,9
Hf4	2	1,4
B4	10,85	0,95
Hf5	1,9	1,4

Fig. 31 : Réflectivité théorique (----) et expérimentale (——) en incidence très rasante d'une multicouche déposée sur support de float glass recouvert d'une épaisse couche de bore (λ_c = 0,154 nm).

de hafnium que nous réalisons contiennent du hafnium, de l'oxygène, du carbone et qu'elles sont peut-être légèrement poreuses.

L'indice des couches de Hafnium utilisé pour les simulations (λ_c = 0,154 nm) est le suivant :

n = 0,999979

k = 1,5 10^{-6}

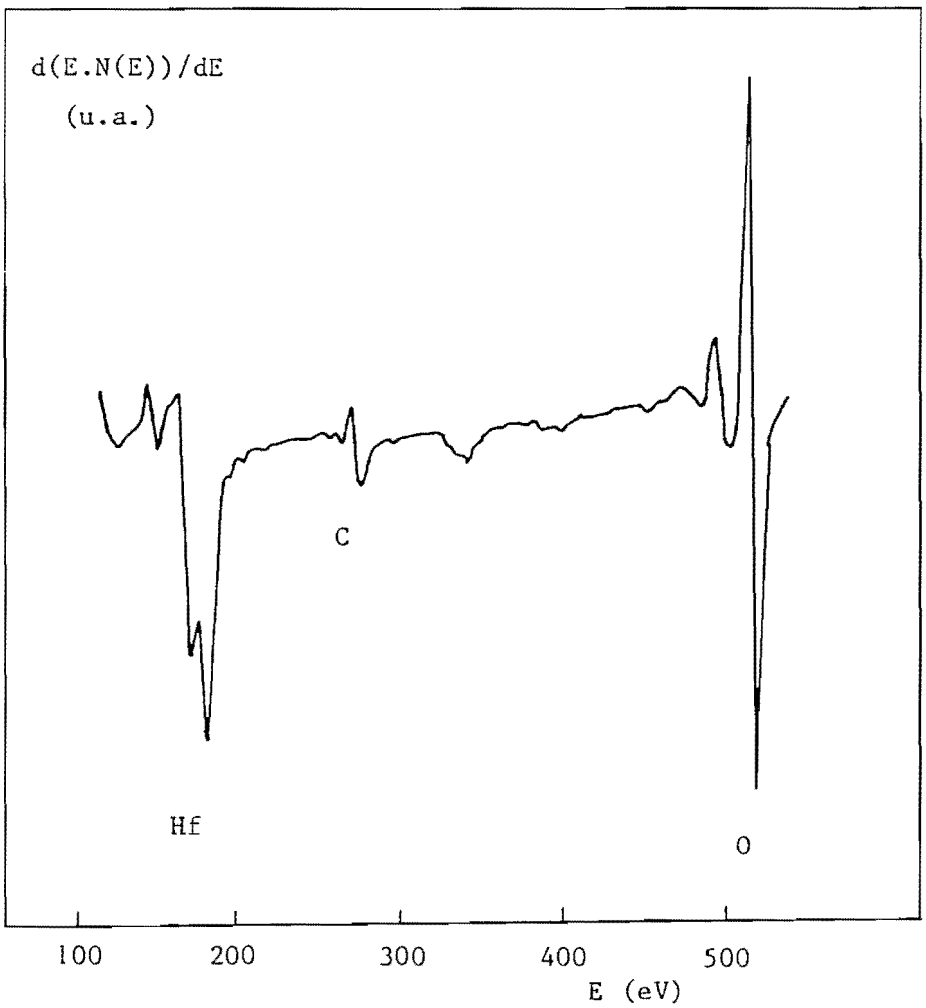


Fig. 32 : Spectre d'électrons Auger d'une couche de Hafnium en cours de dépôt.

.../...

Nous avons vérifié que l'augmentation des rugosités due à la couche d'asphérisation n'est pas catastrophique ; la multicouche reste bien structurée. Les rugosités interfaciales d'un empilement entraînent une diminution de réflectivité que nous chiffrerons plus loin. Il reste à vérifier que la multicouche déposée sur couche de bore reste stable lorsqu'elle est soumise au rayonnement solaire.

c) Résistance de la multicouche au rayonnement solaire

Un échantillon réalisé en même temps que les deux précédents a été exposé pendant quelques heures à un rayonnement identique au rayonnement solaire. Ce test a été réalisé par la Société MATRA. L'échantillon était dans la position du miroir primaire, ce qui ne correspond pas aux conditions les plus sévères car le miroir secondaire reçoit le rayonnement concentré par le miroir primaire.

Cet échantillon est constitué par une multicouche Hf/B déposée sur un support de silice polie recouvert d'une épaisse couche de bore. L'adhérence du dépôt ne semble pas modifiée par l'exposition au rayonnement. L'empilement a été contrôlé à 0,154 nm sur le goniomètre ; la courbe de réflectivité en fonction de l'angle d'attaque est donnée par la fig. 33. La multicouche n'est pas perturbée par le test ; les 5 premiers pics de BRAGG et les 3 Pics secondaires apparaissant entre les pics principaux sont très nets. La structure de l'empilement n'est pas modifiée. La comparaison de cette courbe avec celle de la fig. 29, correspondant à un dépôt analogue sur un support de float glass, montre que la rugosité de l'échantillon exposé au rayonnement n'a pas changé.

Des mesures de réflectivité en X-UV avant et après exposition des multicouches au rayonnement solaire doivent être effectuées ultérieurement.

La conclusion de cette étude est que nous pouvons utiliser le bore pour réaliser les couches d'asphérisation des miroirs du télescope.

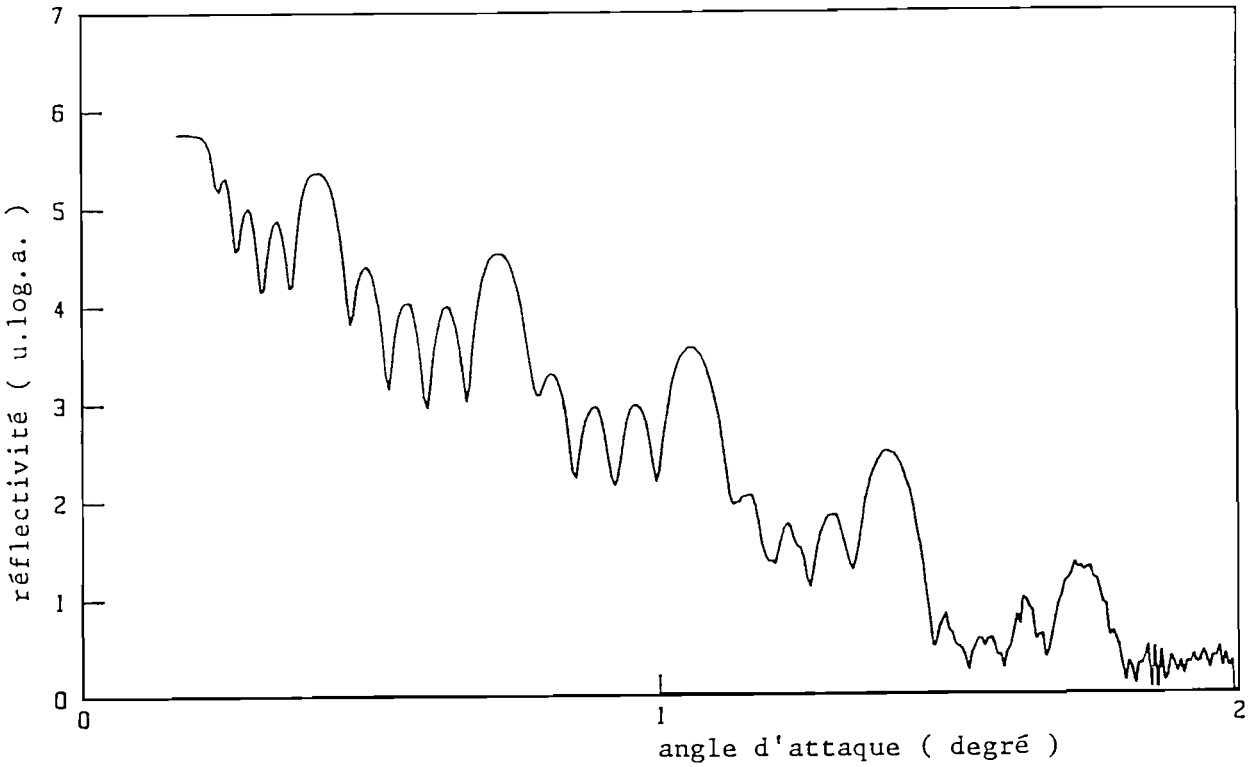


Fig. 33 : Réflectivité en incidence très rasante d'une multicouche Hf/B déposée sur support de silice polie recouvert d'une épaisse couche de bore, après exposition au rayonnement solaire (λ_c = 0,154 nm).

2 - 3 Réalisation des couches d'asphérisation :

a) Dispositif expérimental :

Pour réaliser une couche d'asphérisation, nous interposons entre le substrat et le creuset un cache dont la forme est calculée en fonction du gradient d'épaisseur que l'on veut obtenir. Le cache est placé très près de l'échantillon (1 à 2 mm) pour éviter les effets d'ombrage, il est fixe tandis que l'échantillon est animé d'un mouvement de rotation uniforme.

Les dépôts sont contrôlés par réflectométrie in situ de rayons X mous avec la raie K_α du carbone (4,47 nm), la raie K_α du bore (6,67 nm) n'étant pas utilisable pour contrôler un dépôt de bore.

.../...

b) Détermination de la forme des caches :

b - 1 Miroir primaire :

Le support du miroir primaire est concave et de forme annulaire ; il est en silice polie et sa surface sphérique a un rayon de 664,3 mm. Le profil d'épaisseur de la couche de bore nécessaire à son asphérisation est représenté sur la figure 34-a. Il a été calculé de manière à donner au support sphérique la forme hyperbolique du miroir primaire du télescope définie par l'équation de la génératrice :

$$y^2 = 1327{,}255\ x + 0{,}10699\ x^2$$

(x et y étant exprimés en mm)

Le cache permettant cette réalisation est représenté sur la fig. 32-b à l'échelle 1.

La forme annulaire du miroir permet de placer au centre un échantillon plan en float glass pour contrôler l'épaisseur déposée par réflectométrie X mous. La couche d'asphérisation doit atteindre une épaisseur maximale de 192 nm. A cause de l'absorption, il n'est pas possible d'observer les oscillations du signal sur une épaisseur de bore aussi forte. L'échantillon de contrôle est donc partiellement masqué pour réduire l'épaisseur déposée sur le témoin à 75 nm seulement. La partie du cache réservée pour le contrôle est marquée d'une croix.

b - 2 Miroir secondaire :

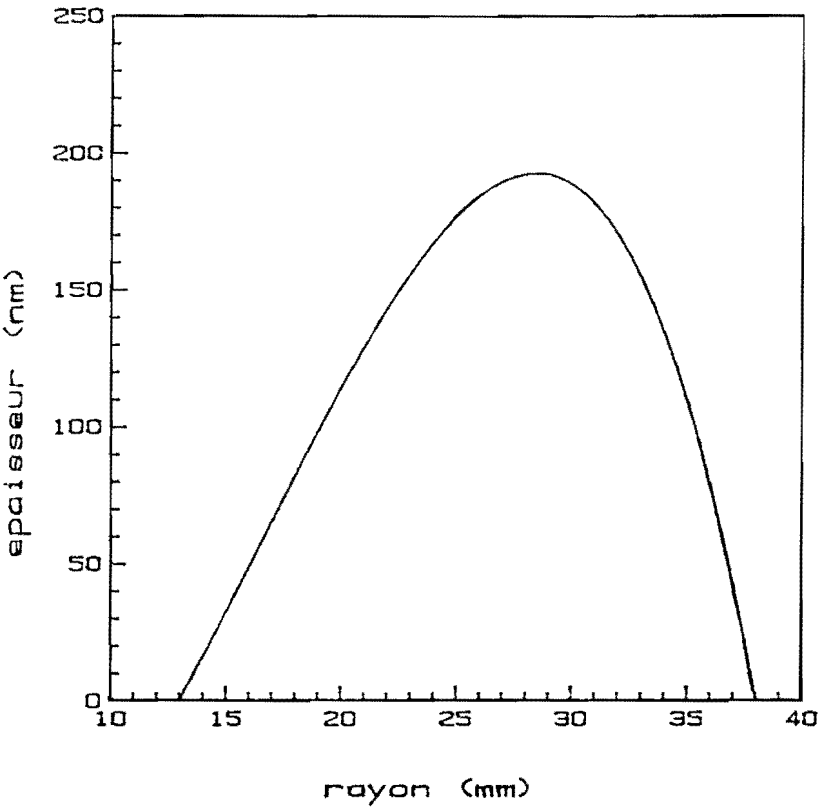
Le support du miroir secondaire est circulaire et de surface convexe. Le profil d'épaisseur de la couche d'asphérisation est représenté sur la fig. 35-a. Le rayon de la surface sphérique est de 324,28 mm ; le profil désiré est donné par l'équation suivante :

$$y^2 = 647{,}01\ x + 0{,}411\ x^2$$

(x et y étant exprimés en mm).

.../...

(a)



(b)

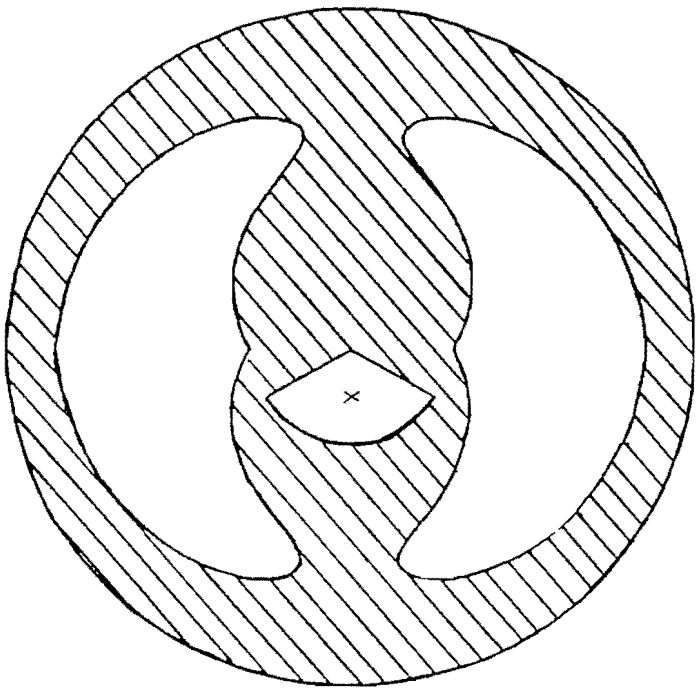
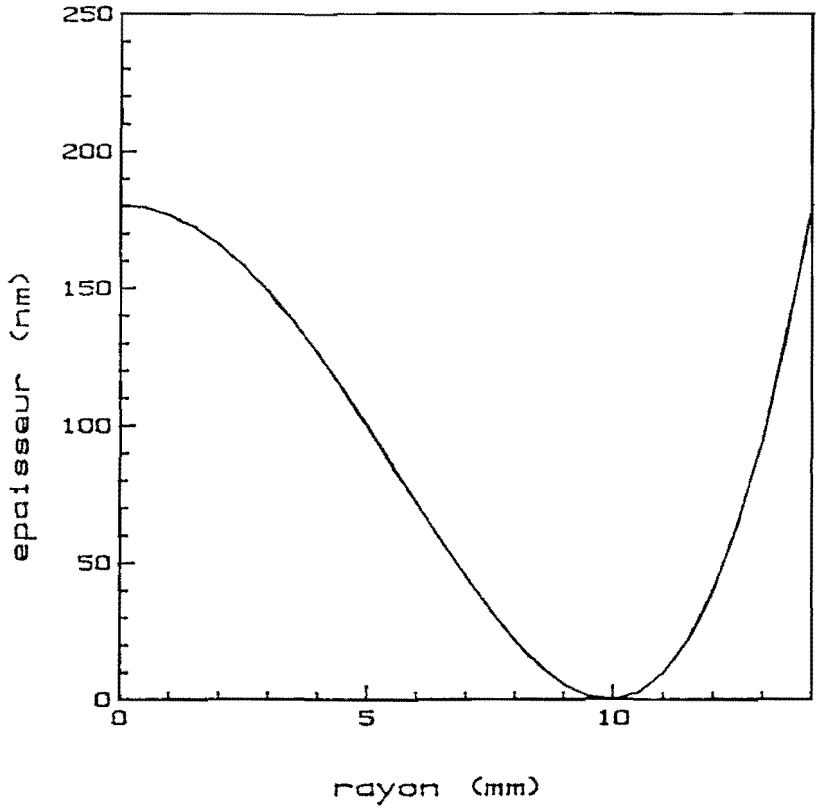


Fig. 34 : Miroir primaire
a) représentation du profil d'épaisseur de la couche d'asphérisation
b) cache permettant la réalisation de cette couche (échelle 1).

(a)



(b)

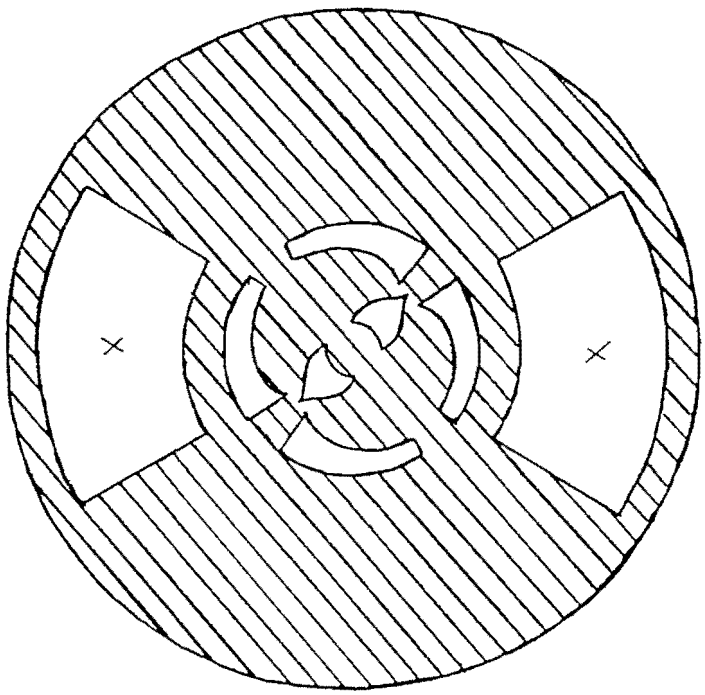


Fig. 35 : Miroir secondaire
a) représentation du profil d'épaisseur de la couche d'asphérisation
b) cache permettant la réalisation de cette couche (échelle 1).

Le cache (fig. 33-b) permettant la réalisation de la couche d'asphérisation masque complètement le centre du support, cette partie n'étant pas utilisée dans le système optique formé par les deux miroirs.

Le contrôle d'épaisseur est effectué sur un échantillon annulaire plan partiellement masqué pour les mêmes raisons que dans le cas du miroir primaire. L'épaisseur maximale atteinte par la couche d'asphérisation est de 180,6 nm et correspond à un dépôt de 81,3 nm sur l'anneau de contrôle.

Les échantillons témoins sont ensuite contrôlés par réflexion de rayons X rasants pour vérifier que les épaisseurs effectivement réalisées sont correctes. D'après les résultats, nous réalisons la couche d'asphérisation avec une précision de 5 % sur l'épaisseur.

2 - 4 Contrôle des couches d'asphérisation :

Deux substrats plans en silice polie ($\lambda/20$, λ visible) ayant respectivement le même diamètre que le miroir primaire et le miroir secondaire, ont reçu des dépôts de bore identiques à ceux de l'asphérisation. Les deux couches de bore à gradient latéral d'épaisseur ont été obtenues en utilisant les deux caches représentés sur les figures 34-b et 35-b.

Pour l'instant, seul le dépôt correspondant au miroir primaire a été contrôlé par M. MULLOT, celui correspondant au miroir secondaire le sera plus tard.

Pour rendre la surface réfléchissante, une couche d'argent d'épaisseur uniforme ($\simeq$ 80 nm) a été déposée sur la couche de Bore. L'opération suivante a consisté à photographier les franges d'interférence obtenues avec le miroir à contrôler et un miroir de référence de très bonne planéïté ($\lambda/100$, λ visible) pour la longueur d'onde de 632,8 nm.

.../...

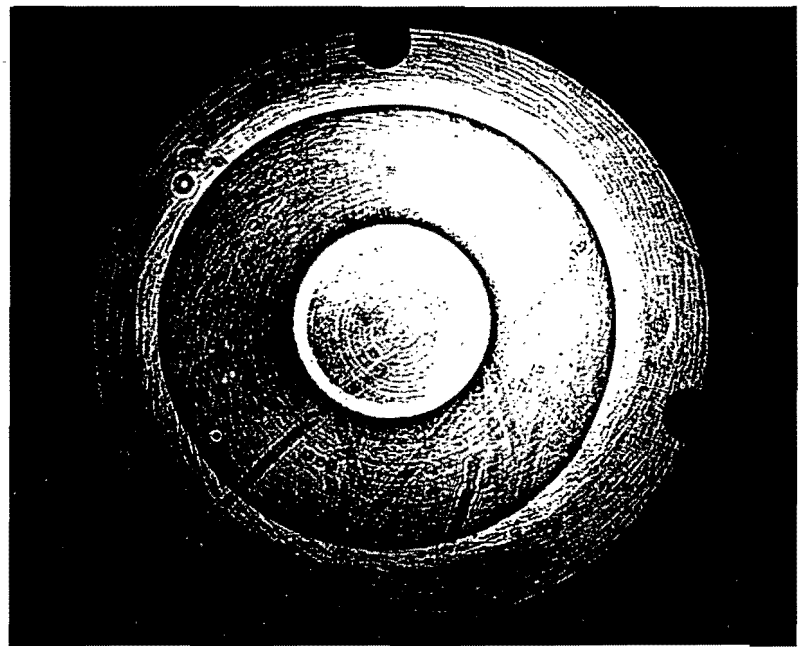


PHOTO.1

L'interférogramme de la photo.1 a été obtenu lorsque les plans moyens des deux miroirs étaient parallèles. Il indique que le gradient radial d'épaisseur a une distribution régulière, indépendante de la direction du rayon .

.../...

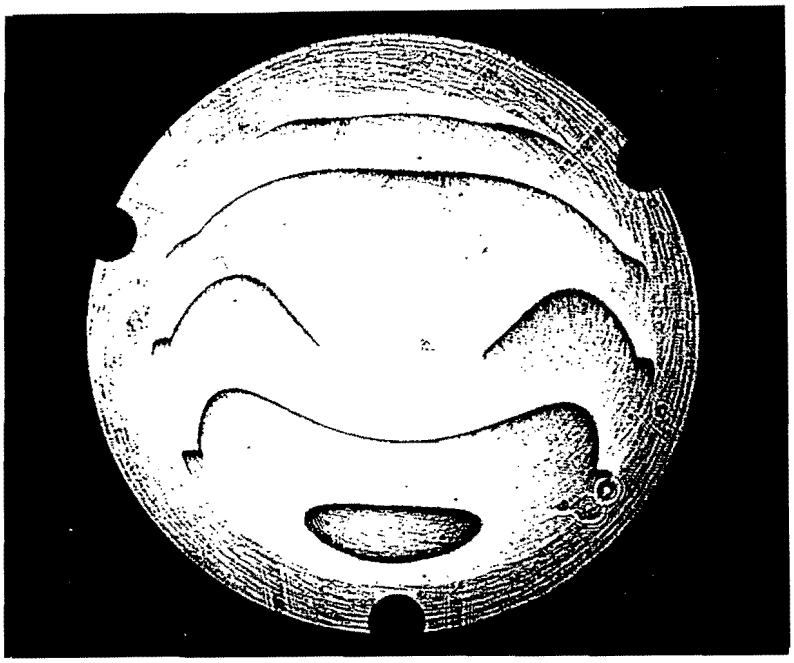


PHOTO. 2

La photo. 2 représente l'interférogramme réalisé en formant un coin d'air entre le miroir contrôlé et le miroir de référence. La couche d'asphérisation doit atteindre une épaisseur maximale de 192 nm ; la valeur mesurée grâce aux franges d'interférence est d = 188,5 nm. D'autre part, la forme des franges, et notamment celle de la frange centrale indique que le gradient radial d'épaisseur est voisin du profil calculé (fig. 34-a).

Ces interférogrammes donnent donc deux résultats : une mesure d'épaisseur cohérente avec celle que l'on désirait réaliser et une vérification de la bonne régularité du gradient latéral d'épaisseur obtenue par cette méthode d'asphérisation.

.../...

3 - Etude théorique des multicouches :

Pour la longueur d'onde de 30,4 nm nous utilisons le silicium comme matériau léger et le tungstène ou le niobium comme élément lourd. Nous avons éliminé le hafnium car certaines multicouches contenant ce matériau s'altèrent lentement au contact de l'atmosphère.

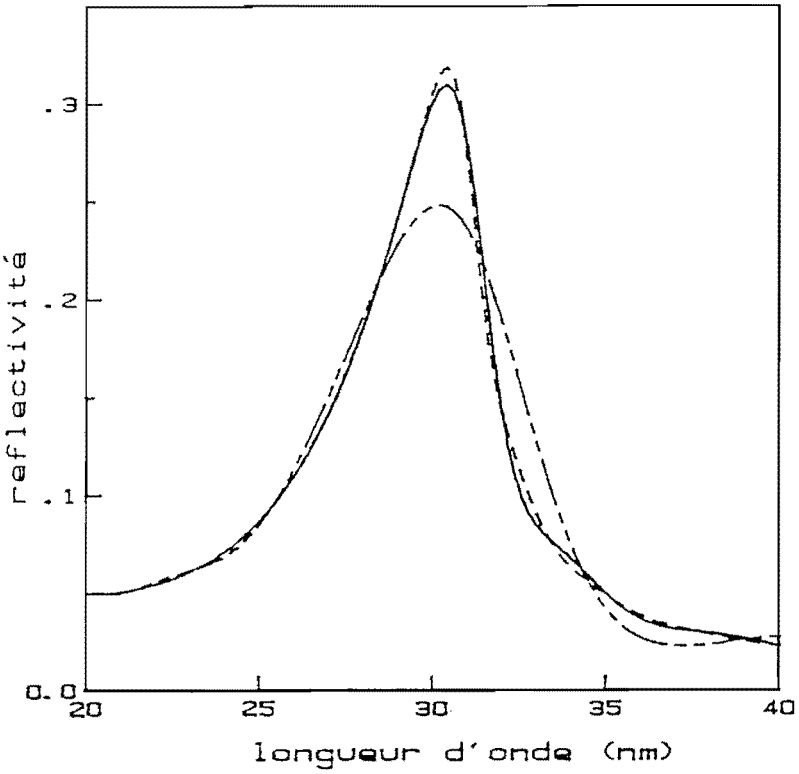
3 - 1 Réflectivité des empilements parfaits :

Nous nous intéressons à deux couples de matériaux : tungstène/silicium et niobium/silicium. Les fig. 36-a et 36-b donnent respectivement pour ces deux couples la réflectivité calculée en fonction de la longueur d'onde pour des empilements comportant 5,10 et 15 bicouches. Les épaisseurs des matériaux sont optimisées pour λ_u = 30,4 nm, en incidence normale.

On constate dans les deux cas une nette différence entre les réflectivités maximales et les bandes passantes des empilements composés respectivement de 5 et 10 bicouches ; par contre les écarts entre les multicouches de 10 et 15 périodes sont beaucoup plus faibles. Nous limiterons donc les empilements à une dizaine de périodes, car il faut tenir compte de l'augmentation de la rugosité avec le nombre de couches. La chute de réflectivité due à la rugosité compenserait le gain obtenu grâce aux cinq dernières bicouches.

.../...

(a)



(b)

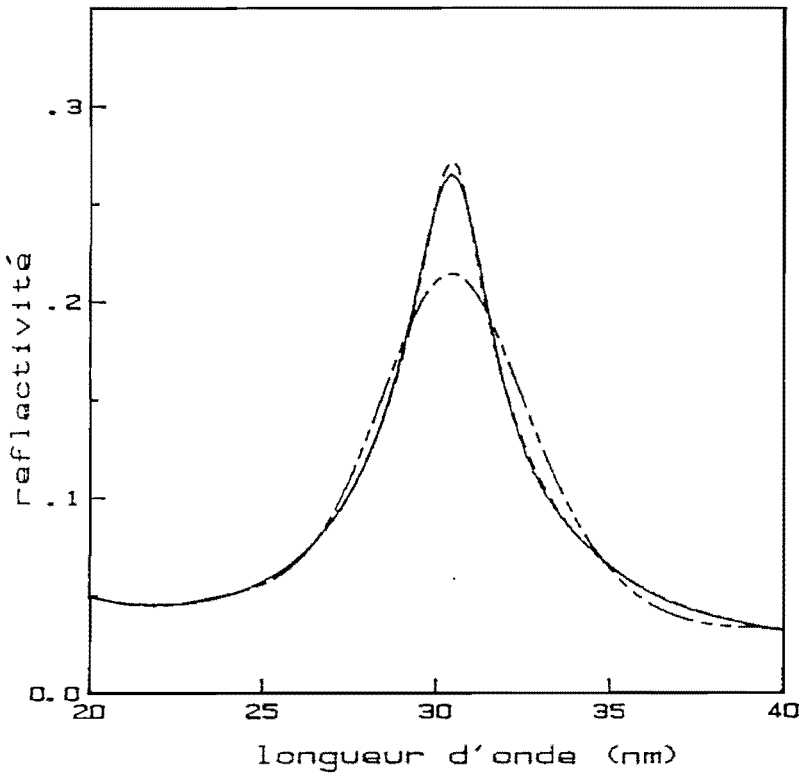


Fig. 36 : Réflectivité calculée de multicouches optimisées pour λ_u=30,4 nm (θ_{inc}=0)

a) empilement W/Si : e_W=3,95 nm et e_{Si}=12,65 nm

b) " Nb/Si : e_{Nb}=3,35 nm et e_{Si}=13 nm

——— 5 bicouches

——— 10 "

- - - - - 15 "

On peut comparer les résultats obtenus avec ces deux couples de matériaux grâce au tableau 1. On constate que quel que soit le nombre de bicouches, les meilleurs réflectivités sont obtenues avec les empilements W/Si.

Nbre de couches	R(%)		largeur à mi-hauteur (nm)	
	W/Si	Nb/Si	W/Si	Nb/Si
5	24,82	21,41	6,3	6
10	30,97	26,47	4,5	4
15	31,87	27,22	4,1	4

Tableau 1

Ces calculs sont faits avec les indices des matériaux calculés pour λ = 30,4 nm : à partir de tables publiées (7).

corps	densité ($g.cm^{-3}$)	n	k
Si	2,33	0,934184	0,009709
W	19,3	0,682314	0,343922
Nb	8,4	0,92	0,47

Tableau 2

Pour réaliser les multicouches dites "tungstène/silicium", nous utilisons en fait un mélange de tungstène et de rhénium. Les calculs ont été faits avec les indices du tungstène qui est en plus grande proportion dans le mélange. Par ailleurs, les indices du tungstène et du rhénium sont très voisins, les deux matériaux ayant des nombres atomiques et des densités comparables.

Nous avons supposé ici que les indices étaient indépendants de la longueur d'onde pour des questions de rapidité de calcul. La fig. 37 permet de constater

.../...

la différence entre la courbe de réflectivité d'un empilement de 10 bicouches W/Si calculée en tenant compte de la variation des indices en fonction de la longueur d'onde et la courbe précédemment obtenue : la variation des indices diminue la bande passante mais ne modifie pas la hauteur du pic de réflectivité.

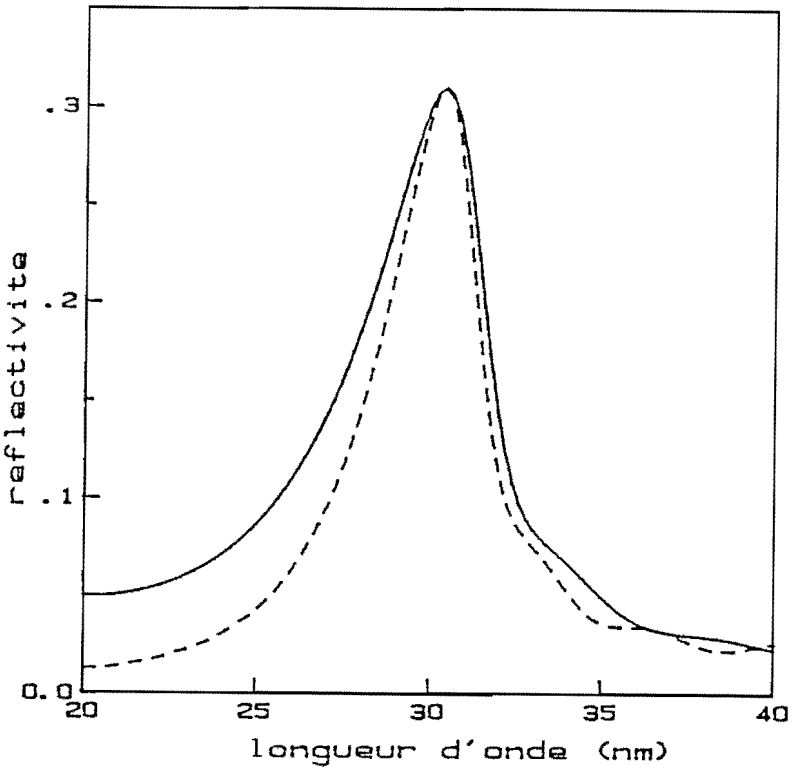


Fig. 37 : Réflectivité d'un empilement W/Si optimisé pour λ_u=30,4 nm
(θ_{inc} = 0, 10 bicouches, e_W = 3,95 nm, e_{Si} = 12,65 nm)
——— indices fixes
----- " variant en fonction de la longueur d'onde.

.../...

3 - 2 Réflectivité des multicouches contaminées :

Nous avons vu que les couches sont contaminées par lesgaz résiduels de l'évaporateur. Les calculs de réflectivité suivants, qui correspondent à des empilements contaminés sont faits en considérant que la proportion d'impuretés dans les matériaux est de 10 %. Les indices utilisés pour obtenir ces résultats sont regroupés dans le tableau 3.

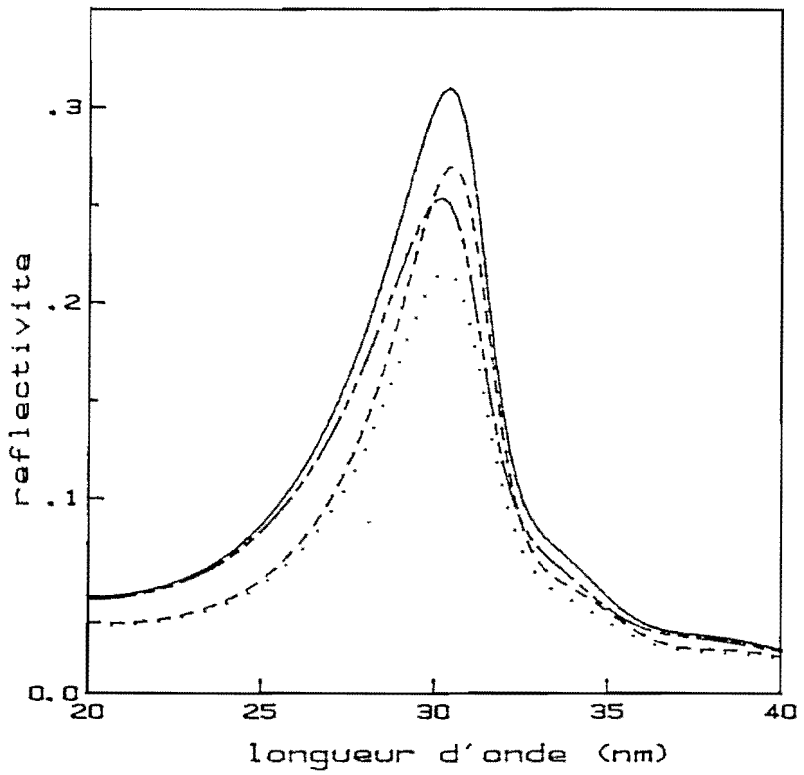
élément	n	k
W + O	0,735534	0,228068
Nb + O	0,919071	0,433462
Si + O	0,930027	0,01449
Si + H	0,933093	0,009896

Tableau 3

La principale impureté étant l'oxygène, il est important d'évaluer quantitativement la perte de réflectivité due à l'oxydation des matériaux. Les figures 38-a et 38-b donnent les réflectivités calculées pour les empilements W/Si et Nb/Si en considérant les cas où le matériau lourd ou le matériau léger est oxydé et celui où les deux éléments sont oxydés. Les valeurs des réflectivités obtenues sont rassemblées dans le tableau 4.
On voit d'après ces résultats que l'oxydation a un effet beaucoup plus néfaste pour le corps léger que pour le corps lourd car elle diminue fortement sa transparence et parce que l'élément léger représente 75 % de la multicouche (n = 2). Lorsqu'on considère que les deux matériaux sont oxydés, ce qui correspond en général à la réalité, la chute de réflectivité est plus importante ; pour les couples W/Si et Nb/Si cette perte correspond respectivement à 30 et 23 % du pouvoir réflecteur d'un empilement parfait. A contamination égale, les résultats du couple W/Si sont toujours meilleurs que ceux du couple

.../...

(a)



(b)

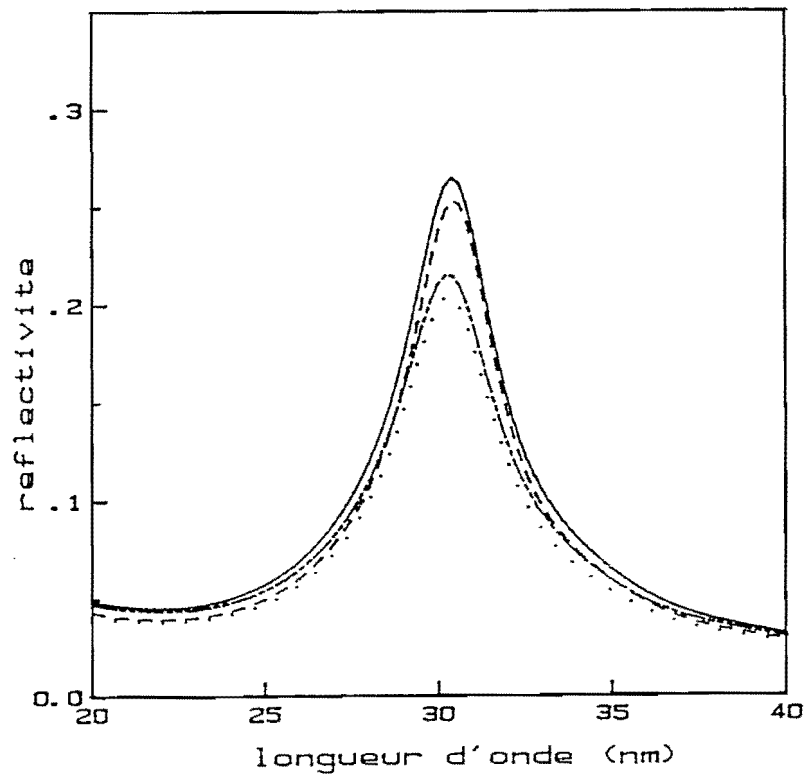


Fig. 38 : Effet de l'oxydation sur la réflectivité calculée de multicouches optimisées pour λ_u = 30,4 nm
(10 bicouches, θ_{inc} = 0)

a) empilement W/Si : e_L = 3,95 nm et e_l = 12,65 nm

b) " Nb/Si : e_L = 3,35 nm et e_l = 13 nm

————	W/si	Nb/Si
– – – – – – –	W + O/Si	Nb + O/Si
—— – – ——	W/Si + O	Nb/Si + O
. . . . .	W + O/Si + O	Nb + O/Si + O

Nb/Si mais on notera que la différence entre les deux empilements diminue lorsque l'on prend en compte l'oxydation des matériaux.

élément leger	élément lourd	réflectivité(%) 10 bicouches	largeur à mi-hauteur (nm)
Si	W	30,97	4,5
Si	W + O	26,93	4
Si + O	W	25,27	5,3
Si + O	W + O	21,55	4,5
Si + H	W	30,62	4,5
Si	Nb	26,47	4
Si	Nb + O	25,28	3,9
Si + O	Nb	21,55	4,8
Si + O	Nb + O	20,43	4,3

Tableau 4

Pour limiter la présence l'oxygène dans les empilements on peut envisager de contaminer les couches avec un élément moins nocif pour l'indice optique. Ainsi on peut espérer limiter l'oxydation de silicium en faisant les évaporations en atmosphère d'hydrogène. Le calcul montre que la réflectivité d'un empilement W/Si de 10 bicouches n'est alors que faiblement modifiée puisqu'elle passe de 30,97 % à 30,62 %.

3 - 3 Influence de la dispersion des épaisseurs sur la réflectivité des multicouches :

Le changement de matériau dans l'empilement s'effectue au passage par un maximum ou par un minimum de réflectivité pour la longueur d'onde de contrôle (4,47 ou 6,67 nm). Le repérage de la position des extrêma dépend de l'expérimentateur et de la qualité du signal ; les couches présentent donc de légères fluctuations d'épaisseurs par rapport aux valeurs calculées. La

.../...

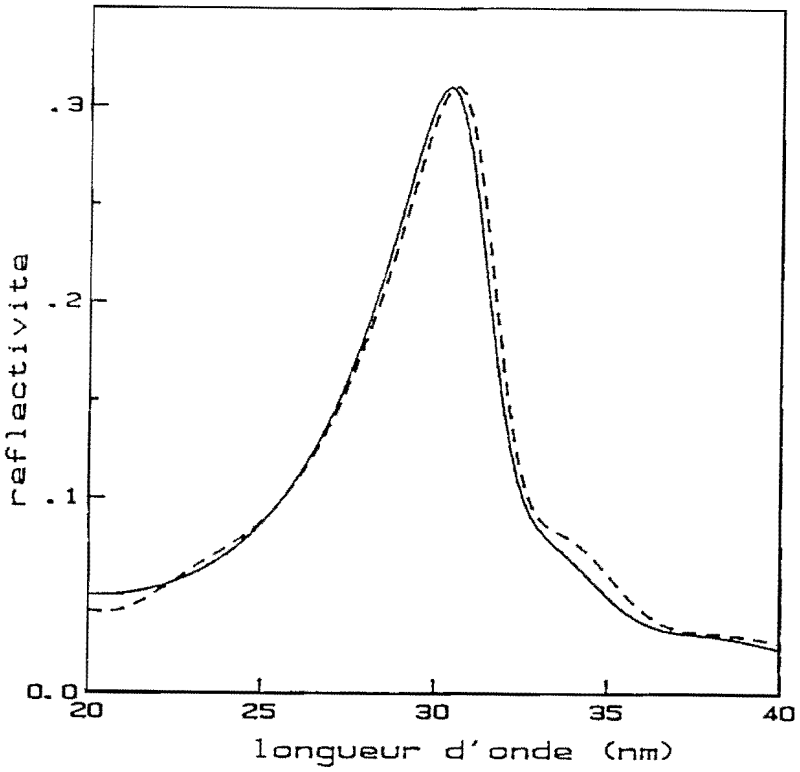


Fig. 39 : Influence de la dispersion des épaisseurs sur la réflectivité calculée d'un empilement W/Si (λ_u=30,4 nm, θ_{inc}=0, 10 bicouches)
——— empilement optimisé : e_W = 3,95 nm et e_{Si} = 12,65 nm
----- dispersion des épaisseurs.

n° bicouche	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
e_W (nm)	4,9	4,6	4,3	3,7	4,1	4,4	3,7	4	4,4	3,8
e_{Si} (nm)	12,7	12,6	13	13	12	12,5	13,2	12,3	12,6	12,4
e_W+e_{Si} (nm)	17,3	17,2	17,3	16,7	16,1	16,9	16,9	16,3	17	16,2

fig. 39 permet de comparer la réflectivité d'un empilement W/Si parfait et celle d'un empilement dont la répartition des épaisseurs est donnée sur la même figure. Les épaisseurs de W varient de 3,7 à 4,9 nm et celles de Si de 12,3 à 13,2 nm ; la période varie entre 16,1 et 17,3 nm. Ces variations correspondent déjà à un pointé approximatif des extrêma compte tenu de la précision de la méthode. On constate cependant que la réflectivité pour λ_u = 30,4 nm ne baisse que très faiblement (30,97 % - 30,87 % = 0,1 %). Le pic de réflectivité est très légèrement décalé, le maximum étant obtenu pour λ = 30,6 nm.

La fluctuation des épaisseurs est donc négligeable pour la longueur d'onde d'utilisation de la multicouche. Une automatisation du contrôle de la vitesse d'évaporation et du changement de matériau présenterait cependant l'avantage de rendre les dépôts plus reproductibles au niveau de leur composition chimique et par conséquent des constantes optiques des couches.

Nous envisageons maintenant des variations d'épaisseur plus importantes correspondant à des erreurs de manipulation pour voir comment évolue la réflectivité pour la longueur d'onde d'utilisation de la multicouche. Considérons un empilement de 10 bicouches optimisé pour λ_u = 30,4 nm et réalisé au 2ème ordre de BRAGG pour la longueur d'onde de contrôle (4,47 nm). Dans la période, les éléments léger et lourd ont respectivement une épaisseur de 3,95 nm et 12,65 nm. Si pour réaliser l'une des périodes on dépose une épaisseur de 16,5 nm de bore au lieu de 12,65 nm on obtient les courbes de réflectivité données par la fig. 40.

Suivant la position de cette erreur dans l'empilement, l'effet produit est plus ou moins important. Lorsque la surépaisseur de bore est placée dans la 3ème période, la réflectivité maximale diminue légèrement (30,97 % - 29,75 % = 1,22 %) et la position du pic est décalée de 0,2 nm vers les grandes longueurs d'onde. Si par contre l'erreur est commise sur la 8ème bicouche l'effet est beaucoup plus important : la réflectivité maximale chute à 24,3 % et le pic est déformé et décalé à λ= 31,5 nm.

.../...

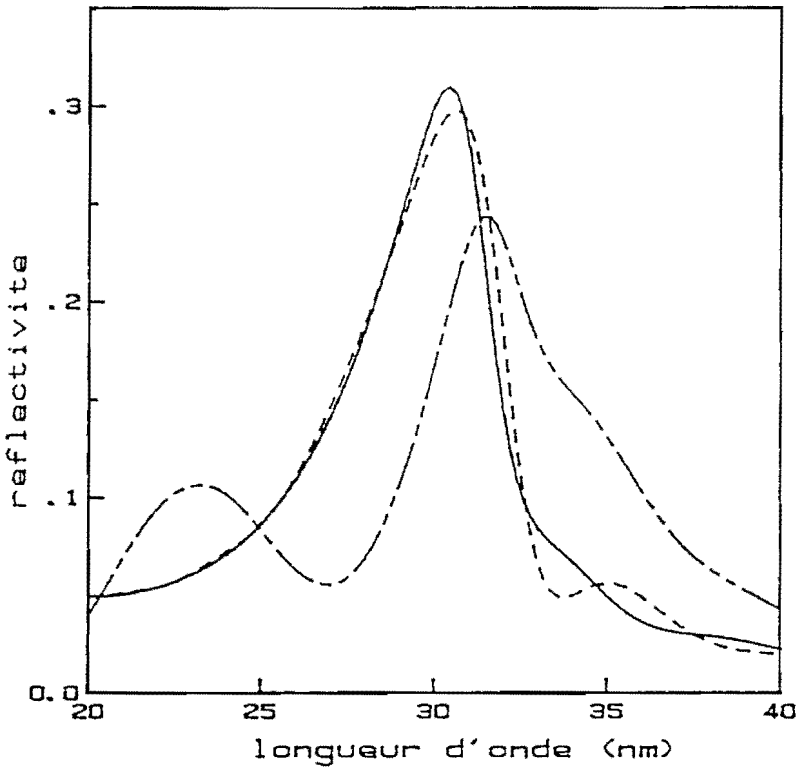


Fig. 40 : Influence d'une erreur d'épaisseur sur la réflectivité calculée d'un empilement W/Si (λ_u = 30,4 nm, θ_{inc} = 0, 10 bicouches)

———— empilement optimisé e_W = 3,95 nm
e_{Si} = 12,65 nm

– – – – – – – pour la 3ème période e_{Si} = 16,65 nm

—— – – —— pour la 8ème période e_{Si} = 16,65 nm

Une erreur a donc une influence d'autant plus importante qu'elle se produit près de la surface libre de l'empilement.

3 - 4 Influence de la rugosité sur la réflectivité :

Pour un dioptre dont les déformations ont une distribution gaussienne caractérisée par une amplitude quadratique moyenne σ, le pouvoir réflecteur est donné par l'expression :

$$R = R_o \exp \left[- (4 \pi \sigma \frac{\sin \theta}{\lambda})^2 \right]$$

L'effet de la rugosité sur la réflectivité dépend donc fortement de la longueur d'onde du rayonnement incident ; en incidence normale et pour σ = 1 nm :

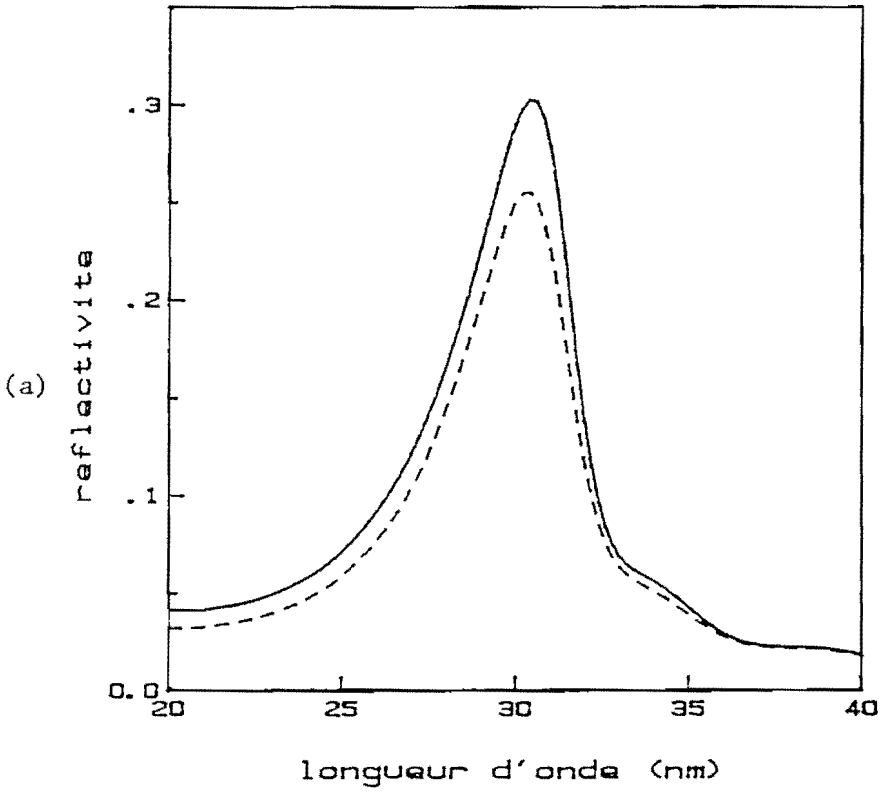
λ(nm)	R/Ro
4,47	$3,7\ 10^{-4}$
30,4	0,84

Examinons l'influence de la rugosité sur le pouvoir réflecteur des deux multicouches qui nous intéressent. Les figures 41-a et 41-b correspondant respectivement aux empilements W/Si et Nb/Si permettent de comparer les réflectivités obtenues pour un empilement non rugueux et pour un empilement dont les rugosités sont de 0,8 nm en valeur quadratique moyenne pour les couches transparentes et de 1,2 nm pour les couches absorbantes. La perte de réflectivité occasionnée par la rugosité est de 3,55 % (30,3 - 26,75) dans le cas de l'empilement W/Si et de 4,63 % (26,15 - 21,52) dans celui de la multicouche Nb/Si.

Remarque :

Les réflectivités des multicouches sont calculées ici non pas avec la répartition optimale des éléments léger et lourd dans la période mais avec la répartition effectivement réalisée par notre méthode de contrôle des épaisseurs.

.../...



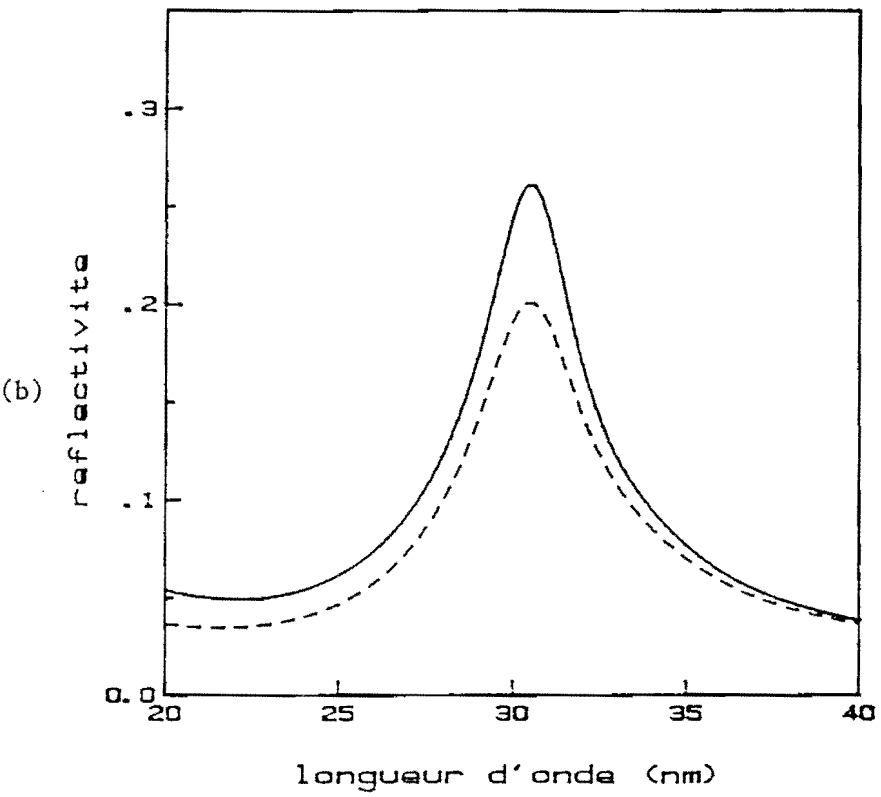


Fig. 41 : Influence de la rugosité sur la réflectivité d'une multicouche

a) empilement W/Si e_W = 3,4 nm et e_{Si} = 13,2 nm

b) empilement Nb/Si e_{Nb} = 3,8 nm et e_{Si} = 12,6 nm

———— empilement non rugueux

------- σ_l = 0,8 nm et σ_L = 1,2 nm

Il en résulte une diminution négligeable de la réflectivité de 0,67 % pour le couple W/Si et de 0,32 % pour le couple Nb/Si.

3 - 5 Influence de l'incidence sur la réflectivité des multicouches :

Les multicouches destinées au téléscope sont optimisées pour λ_u = 30,4 nm et θ_{inc} = 0. Les miroirs du télescope seront utilisés en incidence quasi-normale, il est donc nécessaire de regarder l'effet d'un écart angulaire par rapport à l'incidence normale sur la réflectivité des empilements. La fig. 42 représente la variation de réflectivité d'une multicouche WRe/Si (10 bicouches) en fonction de l'angle d'incidence du rayonnement. La réflectivité est maximale pour θ_{inc} = 0° (30,97 %) et reste supérieure à 30 % tant que l'angle d'incidence ne dépasse pas 4°. L'influence de la variation de l'angle sera donc négligeable sur la réflectivité des multicouches, l'angle d'incidence maximal du rayonnement sur les miroirs du télescope étant respectivement de 3,3° sur le primaire et de 4° sur le secondaire.

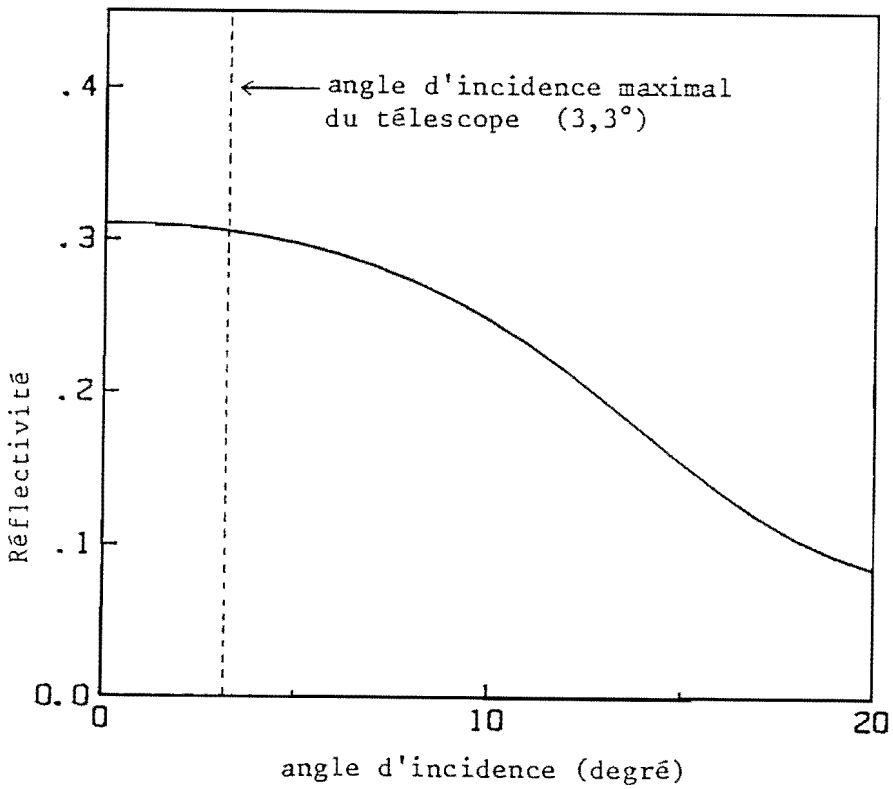


Fig. 42 : Réflectivité d'une multicouche WRe/Si optimisée pour λ_u=30,4 nm et θ_{inc}=0 en fonction de l'angle d'incidence.

Après avoir envisagé toutes les causes possibles qui peuvent entraîner une baisse de la réflectivité des empilements, nous constatons que dans l'état actuel des techniques que nous utilisons pour fabriquer les multicouches, un point important à améliorer serait celui de la pureté des couches. Un premier pas sera fait prochainement en automatisant le procédé d'évaporation, pour assurer une meilleure reproductibilité ; la seconde étape passe par une amélioration du vide résiduel de l'enceinte pendant les évaporations. Le second problème à résoudre est celui de la rugosité des interfaces ; des progrès dans ce domaine nécessiteront sans doute une meilleure compréhension des mécanismes de la croissance des couches, et une étude de l'influence de divers paramètres tels que température, vitesse de dépôt, énergie des atomes, etc.....

.../...

4 - Caractérisation des empilements :

Notre but est de caractériser les empilements suceptibles de servir à la réalisation des miroirs du télescope. Nous utilisons pour cela la spectroscopie d'électrons AUGER et l'étude de la réflectivité pour λ_c = 0,154 nm et λ_c = 4,47 nm.

4 - 1 Caractérisation des matériaux :

Il s'agit de détecter toutes les impuretés présentes dans les couches.

a) Silicium :

Le silicium est très utilisé en électronique pour la conception des circuits intégrés ; son oxydation a été très souvent étudiée par S.E.A. notamment par B.A. JOYCE et J.H. NEAVE en fonction de la température et des pressions d'oxygène dans l'enceinte à vide (31) et par G. HAAS (32) en ce qui concerne la vitesse du phénomène. N. LIESKE et R. HEZEL se sont intéressés aux liaisons chimiques se formant entre le silicium et l'oxygène (33).

La fig. 43 représente les spectres AUGER d'une couche de silicium pendant et quelques heures après sa réalisation. Lors du dépôt, on voit croître le pic (LVV) de basse énergie (92 eV) du silicium mais aucun autre pic n'apparaît. Après l'arrêt de l'évaporation le pic du silicium se déforme très rapidement et diminue en intensité tandis que la raie AUGER KLL de l'oxygène (512 eV) croît très vite. Le spectre se stabilise au bout de quelques heures.

Lors des évaporations de silicium, on réalise donc bien une couche de silicium pur, mais elle s'oxyde en surface après l'arrêt de l'évaporation. Il y a donc intérêt à la recouvrir le plus tôt possible par la couche métallique.

.../...

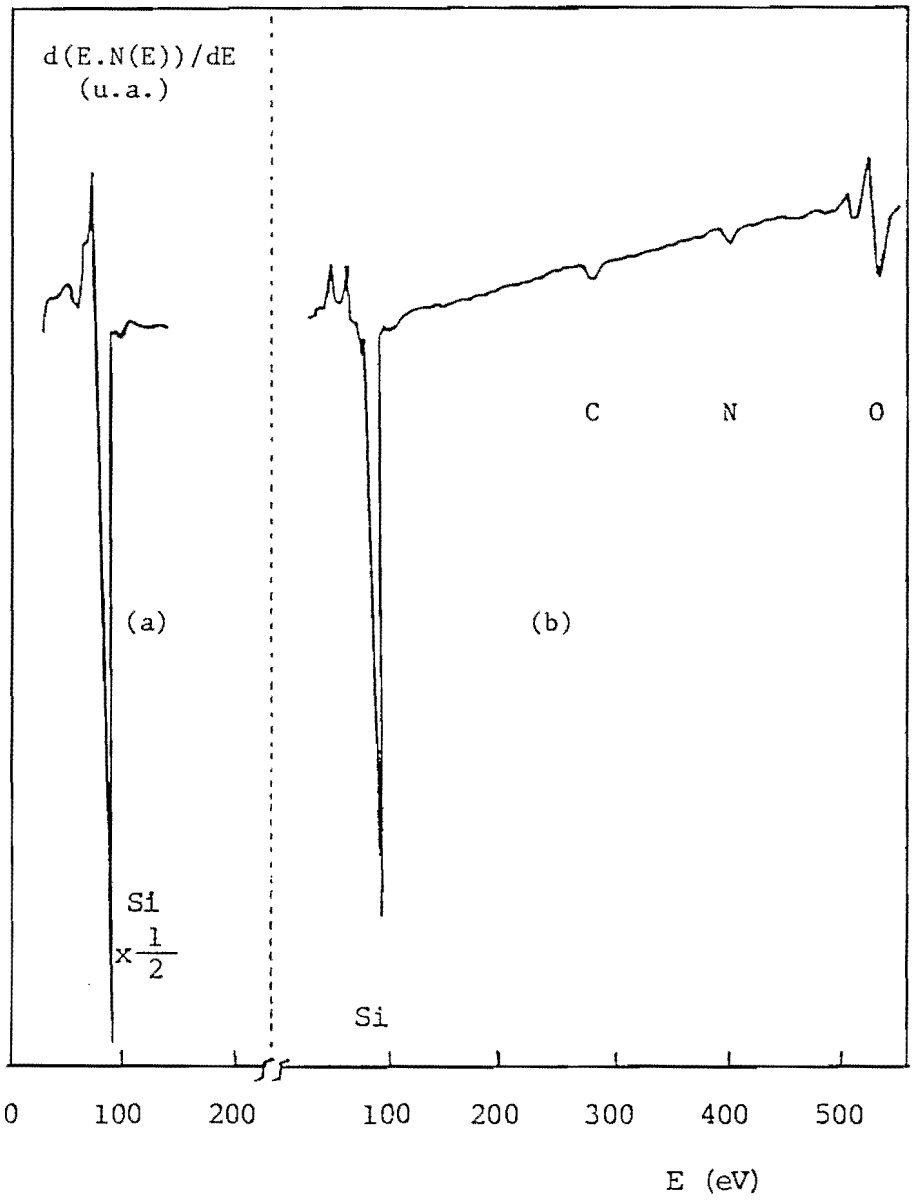


Fig. 43 : a) raie Auger du silicium (92 eV)
b) spectre Auger quelques heures après le dépôt de silicium.

b) Tungstène-rhénium

Pour réaliser les multicouches W/Si nous utilisons un mélange de tungstène (74 %) et de rhénium (26 %) car d'après E. SPILLER (34) les films de cet alliage sont moins rugueux que les couches de tungstène ou que celles de rhénium pur.

b - 1 Composition :

Les évaporations se font par bombardement d'électrons sur un cube massif du mélange tungstène-rhénium.

Une étude par spectroscopie d'électrons AUGER a montré que les pourcentages des deux matériaux détectés dans la couche déposée dépendent de l'état d'usure du cube de matériau massif. Le rhénium, qui a un point de fusion légèrement plus bas que le tungstène, a tendance à s'évaporer plus vite (35) :

		W	R_e
Température de fusion (°C)		3410	3180
Température (°C) de pression de vapeur	10^{-8} Torr	2117	1928
	10^{-6} Torr	2407	2207
	10^{-4} Torr	2757	2571

TABLEAU 5

Le spectre AUGER d'une couche de tungstène-rhénium est représenté sur la fig. 45 ; on note la présence de deux raies intenses (pour 171 et 182 eV), la raie de plus haute énergie ayant une partie négative plus importante que l'autre.W et Re étant deux éléments lourds de numéros atomiques voisins (74 et 75 respectivement), leurs spectres AUGER sont complexes et très semblables. Les raies NOO situées entre 150 et 200 eV

.../...

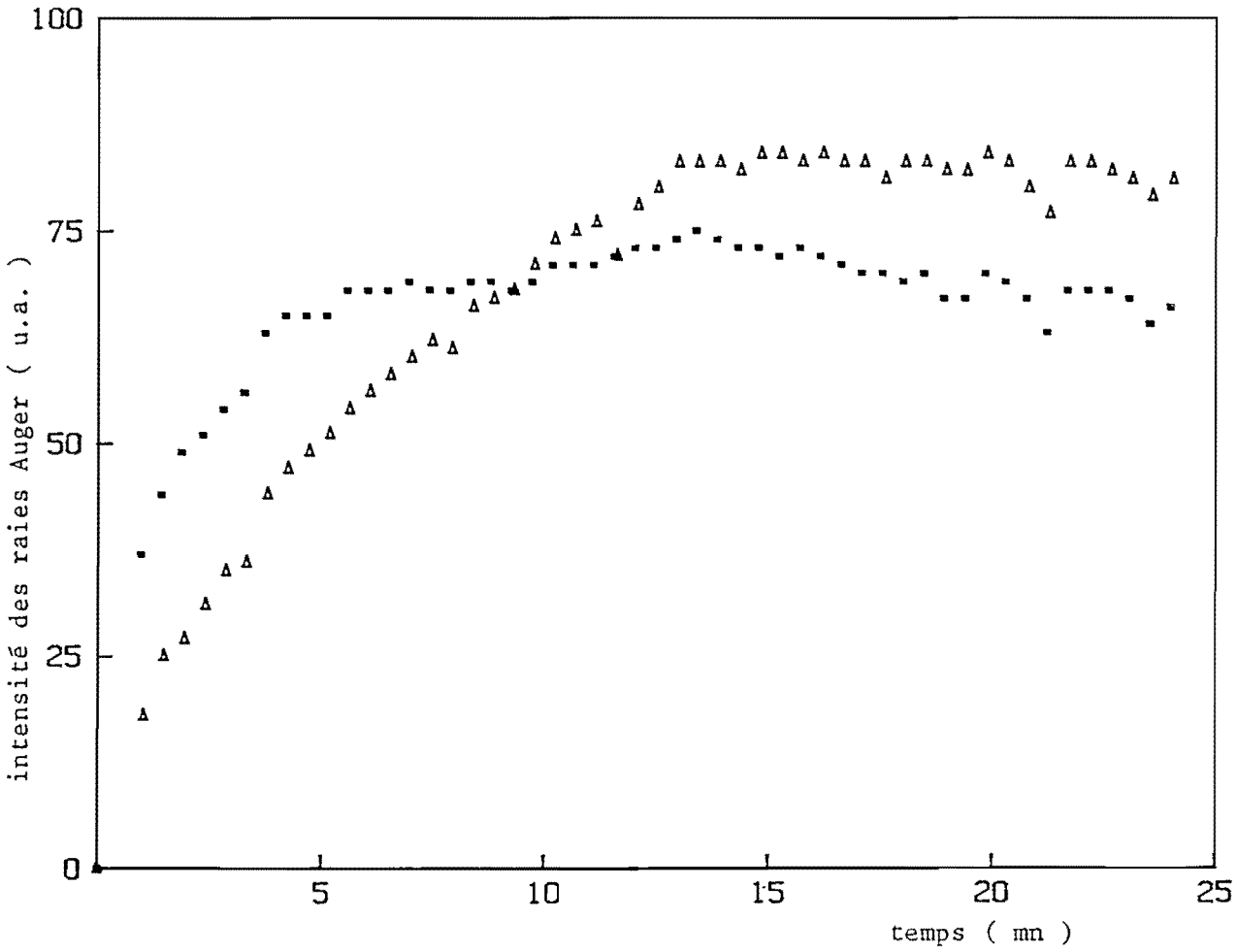


Fig. 44 : évolution de l'intensité de raies Auger du WRe au cours d'une évaporation à partir d'un cube de matériau neuf.

▪ ▪ ▪ 171 eV
Δ Δ Δ 182 eV

se superposent (fig. 45) et ne peuvent être utilisées pour une évaluation de la concentration des deux éléments dans la couche. Cependant au cours d'une évaporation à partir d'un cube d'alliage neuf, nous avons constaté une évolution de la forme de cette série de raies au cours du dépôt, qui correspond à une modification de la concentration des éléments, due à la différence des pressions de vapeur (fig. 44).

En étudiant par S.E.A. un cube de tungstène-rhénium ayant déjà servi à la réalisation de plusieurs multicouches, on observe que la composition n'est pas la même en tous les points de la surface. Un calcul très approximatif permet cependant de retrouver en moyenne la concentration annoncée par le fabricant.

b - 2 Contamination :

Des études détaillées du spectre AUGER du tungstène ont été faites (36). Le problème de l'adsorption de carbone et d'oxygène a été traité particulièrement par K. ISHIDAWA et Y. TOMIDA (37) et celui de la déformation des raies de très basse énergie (∿ 24eV) due à l'oxydation par I.S. SAVCHENKO (38).

Le spectre AUGER représenté sur la fig. 45 montre que les couches minces de WRe que nous réalisons dans des conditions de vide propre sont contaminées par du carbone et par de l'oxygène. La forme de la raie du carbone indique la formation de carbure entre les adatomes métalliques et le carbone de contamination. Le taux de contamination dépend du rapport entre la vitesse de dépôt et la pression résiduelle dans l'enceinte. Dans les conditions d'évaporation utilisées pour la S.E.A., les flux d'atomes métalliques et de gaz résiduels incidents sur la surface de la couche sont comparables (de l'ordre de 1/10ème de couche monoatomique par seconde). Dans la réalisation pratique des multicouches, nous chercherons donc à augmenter la vitesse de dépôt sans modifier la pression résiduelle.

.../...

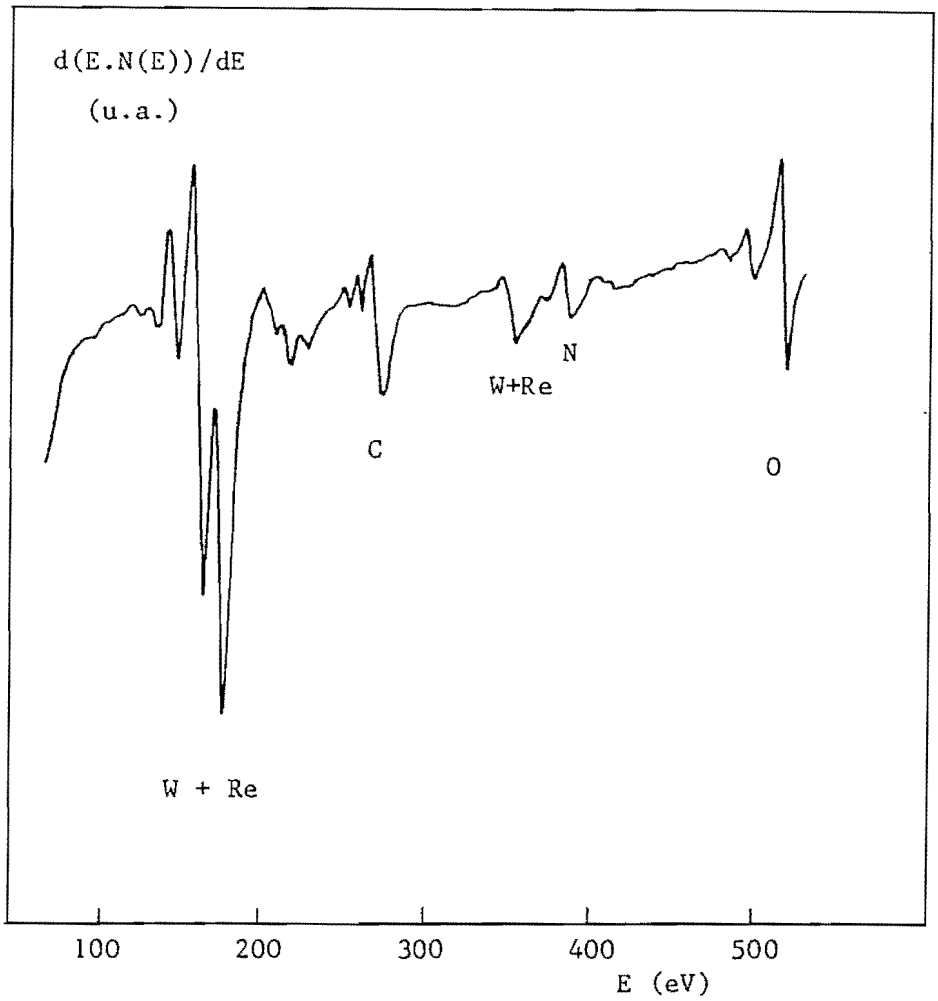


Fig. 45 : Spectre Auger d'une couche mince de WRe.

Ce travail a été complété par la simulation des courbes de réflectivité d'une couche de WRe pour λ_c = 0,154 nm et λ_c = 4,47 nm.

L'étude par réflexion de rayons X rasants (λ_c = 0,154 nm) nous a permis de déterminer la composition de ce film de WRe à partir des résultats obtenus par S.E.A. Les courbes expérimentales et calculées sont représentées sur la fig. 46. La couche est composée d'un sous-oxyde voisin de $(WRe)_3O$, dont la densité est plus faible que celle du mélange tungstène-rhénium pur. La rugosité de la couche est de 0,6 nm pour une épaisseur de 339,5 nm. La disparition des franges aux environs de l'angle θ = 1,7° est due à une couche superficielle d'oxyde qui se forme après la sortie de l'échantillon de l'enceinte à vide.

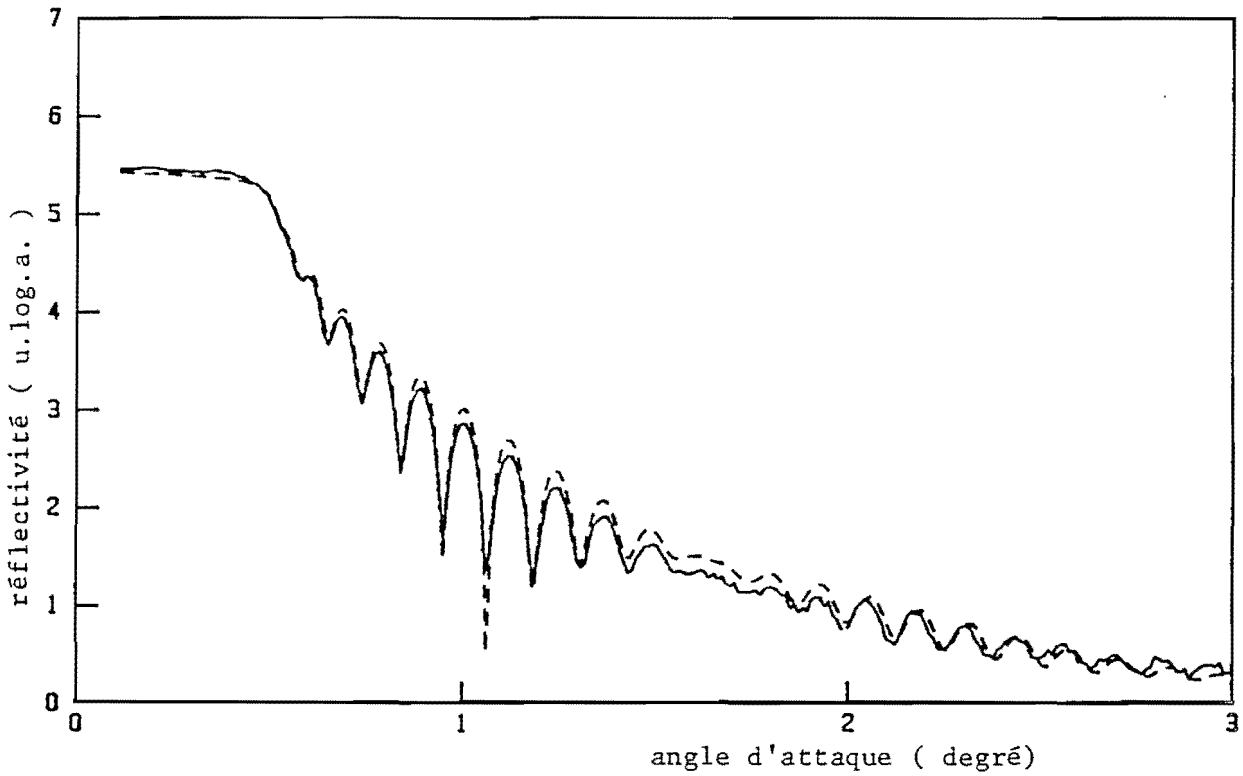


Fig. 46 : Rélfectivité théorique (----) et expérimentale (——) en incidence très rasante d'une couche de WRe (λ_c=0,154 nm)

	e(nm)	σ(nm)	n	k
F.G.	∞	0,4	0,999992	0,12 10^{-6}
$(WRe)_3O$	32,55	0,665	0,99996	3,5 10^{-6}
couche sup d'oxyde	1,4	0,6	0,999982	1,2 10^{-6}

.../...

Les résultats obtenus pour λ_c = 4,47 nm sont regroupés sur la fig. 47. Deux simulations de la courbe de réflectivité in situ ont été obtenues à partir d'hypothèses différentes :

1ère simulation : la couche est composée de WRe pur ;

2ème simulation : la couche est composée de WRe oxydé ($(WRe)_3O$).

A partir de chacune de ces hypothèses la variation de la rugosité en fonction de l'épaisseur de la couche a été déterminée de manière à ajuster la courbe de réflectivité expérimentale avec la courbe calculée. Quelle que soit la composition de la couche, la rugosité σ (d) n'est pas une fonction monotone de l'épaisseur. La variation de la rugosité peut s'expliquer par le mécanisme de croissance des couches de WRe. Au début il y a formation et croissance d'ilôts isolés sur le substrat donc augmentation de la rugosité de la surface. Les adatomes remplissent ensuite les trous jusqu'à ce qu'une couche continue soit formée, ce qui se produit pour une épaisseur de 5 nm environ. La couche croît ensuite de manière homogène par fixation aléatoire des adatomes sur la surface, la rugosité augmente alors approximativement comme une fonction en racine carré de l'épaisseur.

La première hypothèse (WRe pur) n'est pas très réaliste, la S.E.A. et l'étude pour λ_c = 0,154 nm ayant montré la présence d'oxygène. L'accord entre les courbes expérimentale et théorique nécessite une forte rugosité ($\sim$ 1 nm) qui ne correspond pas avec l'étude faite par réflexion de rayons X rasants. Par contre dans le cas de la deuxième simulation ($(WRe)_3O$), la composition et la valeur finale de la rugosité ($\sim$ 0,7 nm) concordent parfaitement avec les résultats obtenus précédemment.

./.

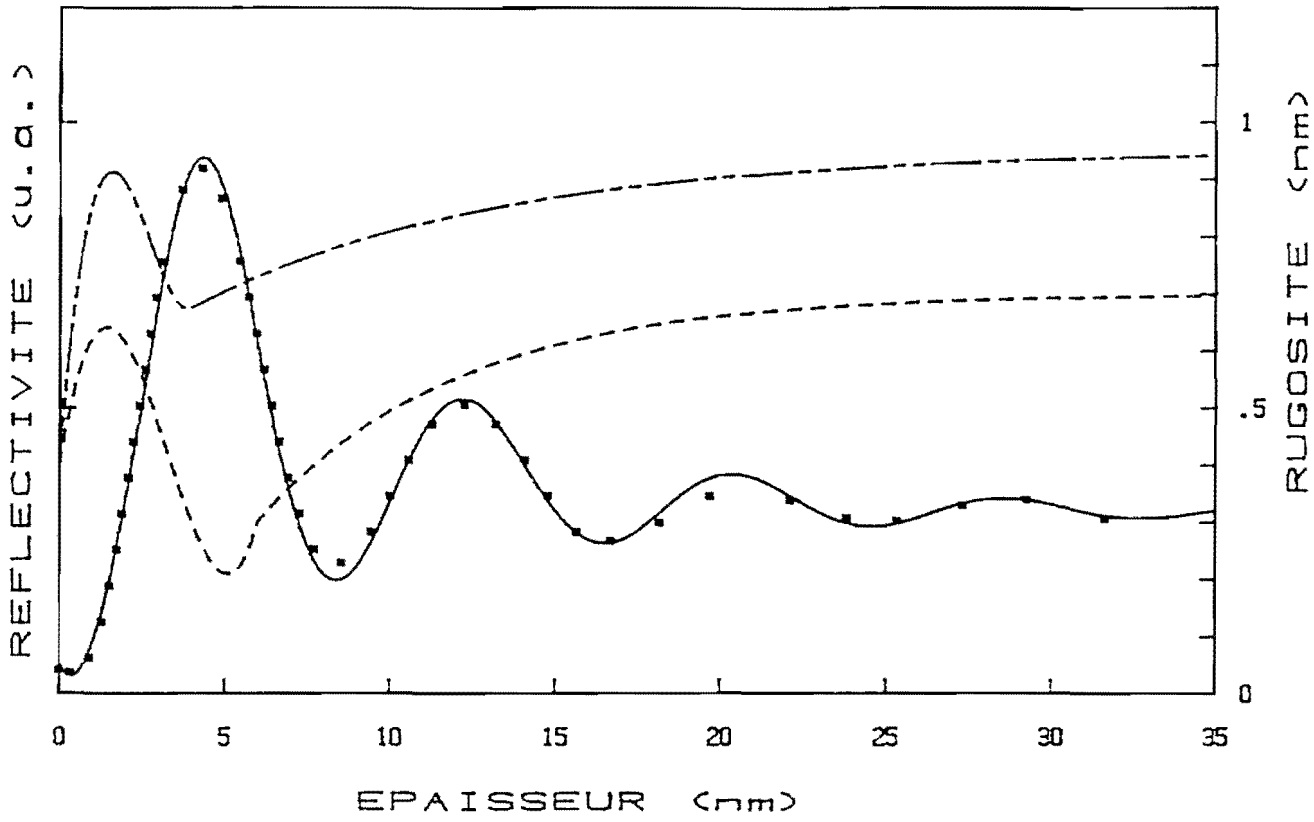


Fig. 47 : Réflectivité théorique (——) et expérimentale (• • •) d'une couche de WRe ,en fonction de l'épaisseur (λ =4.47nm , θ_{inc}=72°).
variation calculée de la rugosité en fonction de l'épaisseur :

—— -- —— la couche est composée de WRe pur
---------- la couche est composée de $(WRe)_3O$

	n	k
Support	0,994617	0,001617
WRe	0,988666	0,01314
$(WRe)_3O$	0,98966	0,0109

c) Niobium

Les multicouches Nb/Si ont théoriquement une moins bonne réflectivité à 30,4 nm que les empilements WRe/Si. Cependant nous avons vu que les couches ne sont pas parfaites, du fait des impuretés et de la rugosité En conséquence nous avons tout de même retenu le couple Nb/Si, car la perte de réflectivité due aux indices optiques des matériaux pourrait éventuellement être compensée par une meilleure qualité des couches.

La pression dans l'enceinte à vide est de 10^{-6} Pa lors des évaporations de Nb au lieu de 10^{-5} Pa pendant celle de WRe ; le niobium s'oxyde moins que le tungstène-rhénium. L'enregistrement de spectres AUGER pendant le dépôt montre la présence d'un peu d'oxygène dans la couche ; cette contamination peut être complètement éliminée si l'on dégaze au préalable le Nb du creuset pendant plusieurs heures et si l'on évapore à plus grande vitesse (0,4 nm/s). Après l'arrêt du dépôt, la surface de l'échantillon s'oxyde comme le montre la fig. 48 représentant le spectre d'une couche de Nb quelques heures après sa réalisation.

L'étude faite par réflexion de rayons X rasants (λ_c = 0,154 nm) confirme que les couches de Nb ne sont oxydées qu'en surface. Les résultats sont rassemblés sur la fig. 49. La densité et l'indice de la couche déterminés par cette méthode sont ceux du Nb massif. Un couche d'oxyde Nb_2O_5 de 1,8 nm d'épaisseur placée en extrême surface permet d'obtenir un bon accord entre les courbes expérimentale et théorique. La rugosité de l'interface entre la couche de Nb et celle de Nb_2O_5 est importante (1,2 nm) ce qui indique que les deux couches ne sont pas nettement distinctes : il y a une zone d'oxydation inhomogène à partir de la surface. La rugosité du F.G. étant généralement de 0,3 à 0,4 nm, la forte valeur (1,2 nm) obtenue par ce calcul montre qu'il existe probablement une couche de passage entre le verre et le niobium. Cette couche pourrait résulter de l'interaction entre le métal et les contami-

./.

nants absorbés sur la surface du verre. Un résultat important est la faible rugosité d'extrême surface de l'échantillon (0,375 nm) ; c'est la rugosité finale de la couche qui intervient dans les empilements, l'oxydation ayant peu de temps pour se produire avant le dépôt du matériau léger.

Ce travail montre qu'en prenant certaines précautions nous pouvons réaliser des couches de Nb non contaminées et peu rugueuses.

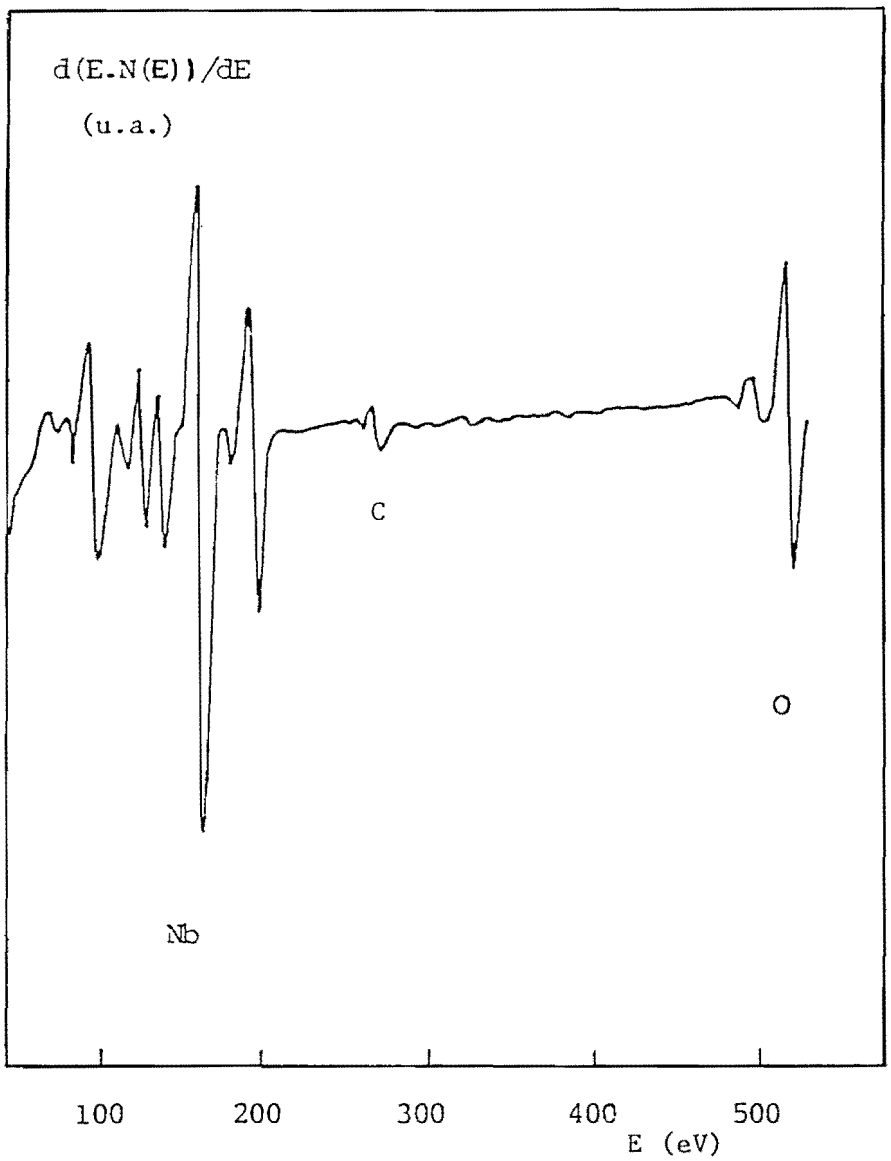


Fig. 48 : Spectre Auger d'une couche de Nb quelques heures après sa réalisation.

.../...

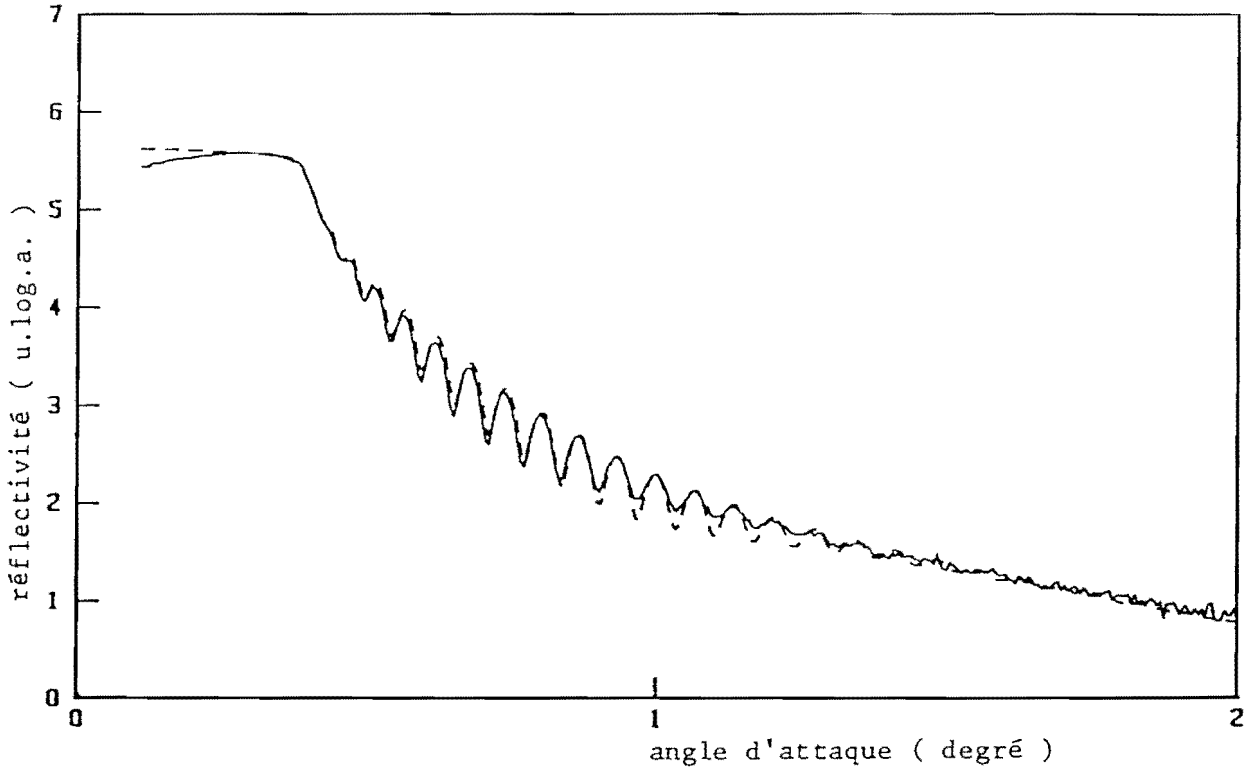


Fig. 49 : Réflectivité théorique (----) et expérimentale (——) en incidence très rasante d'une couche de Nb (λ_c = 0,154 nm).

	e(nm)	σ(nm)	n	k
F.G.	∞	1,2	0,999992	$0,12\ 10^{-6}$
Nb	58,4	1,2	0,999976	$1,6\ 10^{-6}$
Nb_2O_5	1,8	0,375	0,999986	$0,6\ 10^{-6}$

4 - 2 Stabilité des empilements :

a) Empilement WRe/Si :

La spectroscopie d'électrons Auger a montré que l'interface obtenue en déposant le silicium sur le tungstène-rhénium est stable. L'interface opposée est beaucoup moins stable ; il arrive qu'après le dépôt de WRe la raie du silicium (92 eV) réapparaisse spontanément. Ce phénomène peut être dû soit à une interdiffusion des matériaux, soit à un réarrangement en amas de la couche ultra-mince de WRe. Compte tenu de la stabilité de l'interface Si/WRe, il semble bien que la deuxième hypothèse soit la plus vraisemblable. Effectivement, lorsqu'on recouvre rapidement la couche de WRe par du Si ce réarrangement ne se produit plus, les courbes de réflectivité à λ_c = 0,154 nm montrant que les empilements WRe/Si sont stables et bien structurés.

b) Empilement Nb/Si :

La figure 50 représente l'évolution des raies Auger pendant un dépôt de Nb sur une couche de silicium. La vitesse d'évaporation est de 2,5 nm/mn environ. La décroissance du pic du Si est très lente, ce qui signifie que la croissance de la couche de Nb se fait par ilôts. L'évaporation a été arrêtée avant que la niobium ne recouvre complètement le silicium : on observe alors une faible croissance de la raie du substrat.

Par contre, après le dépôt d'une couche de l'un des deux matériaux recouvrant complètement la couche inférieure on ne voit jamais réapparaître les raies Auger de la couche servant de substrat. Les atomes de Nb semblent moins mobiles que ceux de tungstène-rhénium. Ces deux matériaux sont utilisés comme barrière de diffusion dans les circuits intégrés en électronique (39), et sont donc de bons candidats pour les multicouches, en association avec le silicium.

Pendant le dépôt de silicium sur du niobium, on observe qu'il faut

.../...

2,5 nm de silicium pour diminuer de moitié le signal Auger du niobium, ce qui indique un mode de croissance initial par amas tridimensionnels.

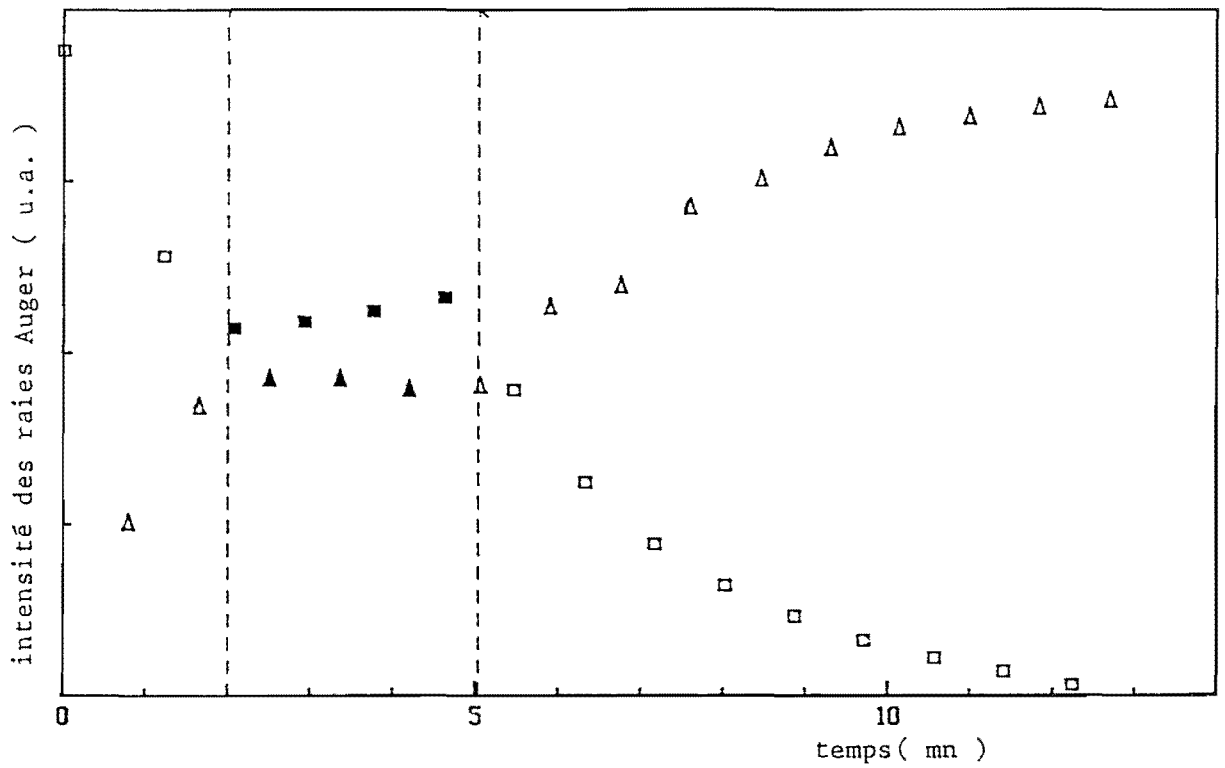


Fig. 50 : évolution des raies Auger pendant le dépôt de Nb sur une couche de Si

Δ Nb (169 eV)
□ Si (92 eV)

▲ Nb
■ Si
} pendant l'arrêt de l'évaporation

5 - Choix des matéraiux de la multicouche :

5 - 1 Contrôle des multicouches :

Plusieurs échantillons ont été réalisés de manière à tester leurs performances en X-UV avant et après exposition au rayonnement solaire. Les incertitudes concernant la valeur des indices pour la longueur d'onde de contrôle et la longueur d'onde d'utilisation de la multicouche ainsi que la sensibilité du réglage de l'angle de contrôle nous ont conduit à réaliser des empilements dont la période encadre la valeur optimale déterminée par calcul. Le nombre de périodes des multicouches varie de 7,5 à 22,5 afin de mesurer le gain de réflectivité en fonction du nombre de bicouches. Avant les tests décisifs en X-UV, les contrôles effectués concernent principalement les épaisseurs et les rugosités.

La fig. 51 donne l'exemple du signal de réflectivité mesuré in situ lors de la réalisation au 2ème ordre de BRAGG d'une multicouche WRe/Si composée de 7,5 bicouches. Notre méthode de fabrication ne permet pas de réaliser un empilement strictement périodique. L'épaisseur de silicium est constante (11,8 nm) mais il faut attendre la 4ème bicouche pour que l'épaisseur de WRe se stabilise (4 nm, 3,3 nm, 3,2 nm puis 3,1). Ces valeurs sont obtenues par des programmes de simulation numérique. Après le dépôt de chacune des 6 premières couches de WRe, on constate un gain de réflectivité. Ensuite la réflectivité diminue pour λ_c = 4,47 nm à cause de la rugosité, tout en continuant à augmenter pour la longueur d'onde d'utilisation de l'empilement. Les rugosités interfaciales des multicouches seront chiffrées dans le chapitre suivant. On remarque sur cette figure que le raccordement entre le deuxième minimum de Si et celui du WRe n'est pas toujours parfait. En effet, nous devons corriger l'intensité mesurée lors du dépôt de corps lourd afin de tenir compte du rayonnement parasite du creuset, particulièrement important pendant les évaporations de matériaux lourds.

.../...

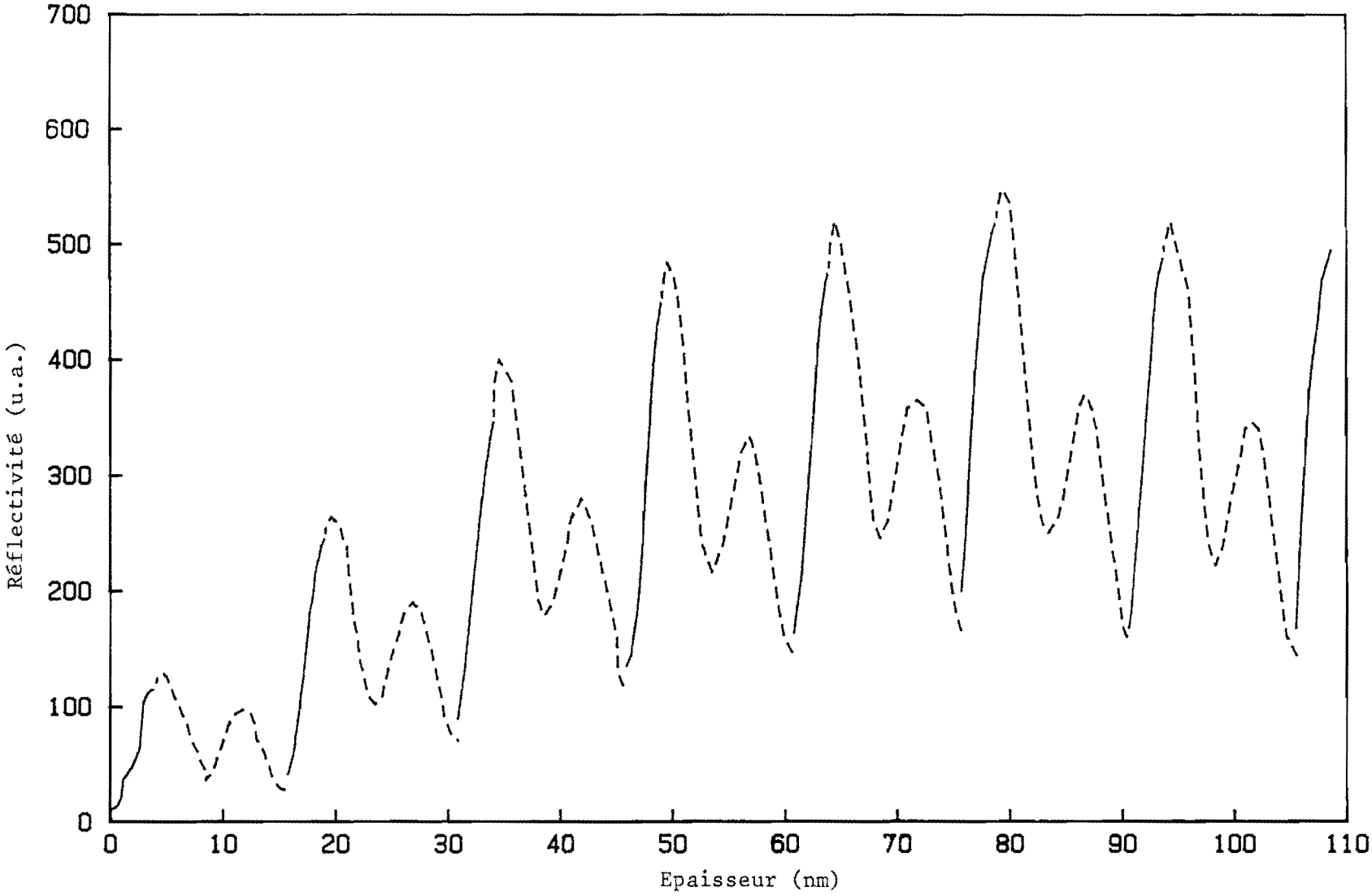


Fig. 51 : Réflectivité expérimentale d'une multicouche WRe/Si pendant la fabrication (λ_c = 4,47 nm, θ_{inc} = 71°, 7,5 bicouches, période moyenne = 14,9 nm).

———— WRe

------ Si

Les fig. 52 et 53 nous permettent de comparer pour deux couples de matériaux (WRe/Si et Nb/Si) la réflectivité expérimentale en cours de fabrication de la multicouche avec la réflectivité théorique ne tenant pas compte des rugosités. La réflectivité théorique augmente pendant le dépôt des 5 ou 6 premières bicouches, puis elle reste constante. Cette saturation est due à l'absorption relativement importante des deux matériaux pour la raie K_α du carbone. Le faisceau pénètre peu profondément dans l'empilement ; un nombre restreint et constant de plans contribuent alors à la réflectivité. On remarquera que pour la longueur d'onde de contrôle les réflectivités des deux empilements diffèrent d'un ordre de grandeur tandis que pour λ_u = 30,4 nm les performances des deux couples de matériaux sont voisines.

Pour pouvoir comparer les courbes expérimentale et théorique nous normalisons la courbe mesurée par rapport à la valeur calculée du maximum de réflectivité obtenu par la première couche de corps lourd en considérant que sa rugosité est d'environ 0,8 nm en valeur quadratique moyenne. On observe alors que certains minima expérimentaux sont supérieurs aux valeurs théoriques, ce qui peut être dû à la normalisation arbitraire et à l'imprécision des indices. On observe à la fois sur les courbes expérimentale et théorique que la réflectivité augmente légèrement au début du dépôt du matériau léger, bien que le dépôt du corps lourd ait été arrêté lors du passage au maximum. Il s'agit donc d'un effet lié aux constantes optiques des matériaux pour la longueur d'onde de contrôle. Cependant, l'augmentation de réflectivité observée expérimentalement au début du dépôt de silicium est plus importante que celle que l'on obtient par calcul. Cette différence peut être due encore une fois aux valeurs des indices que nous avons utilisés pour le calcul mais également au fait que les premiers atomes de silicium arrivant sur la couche de corps lourd peuvent lisser la surface, les couches d'éléments légers ayant

.../...

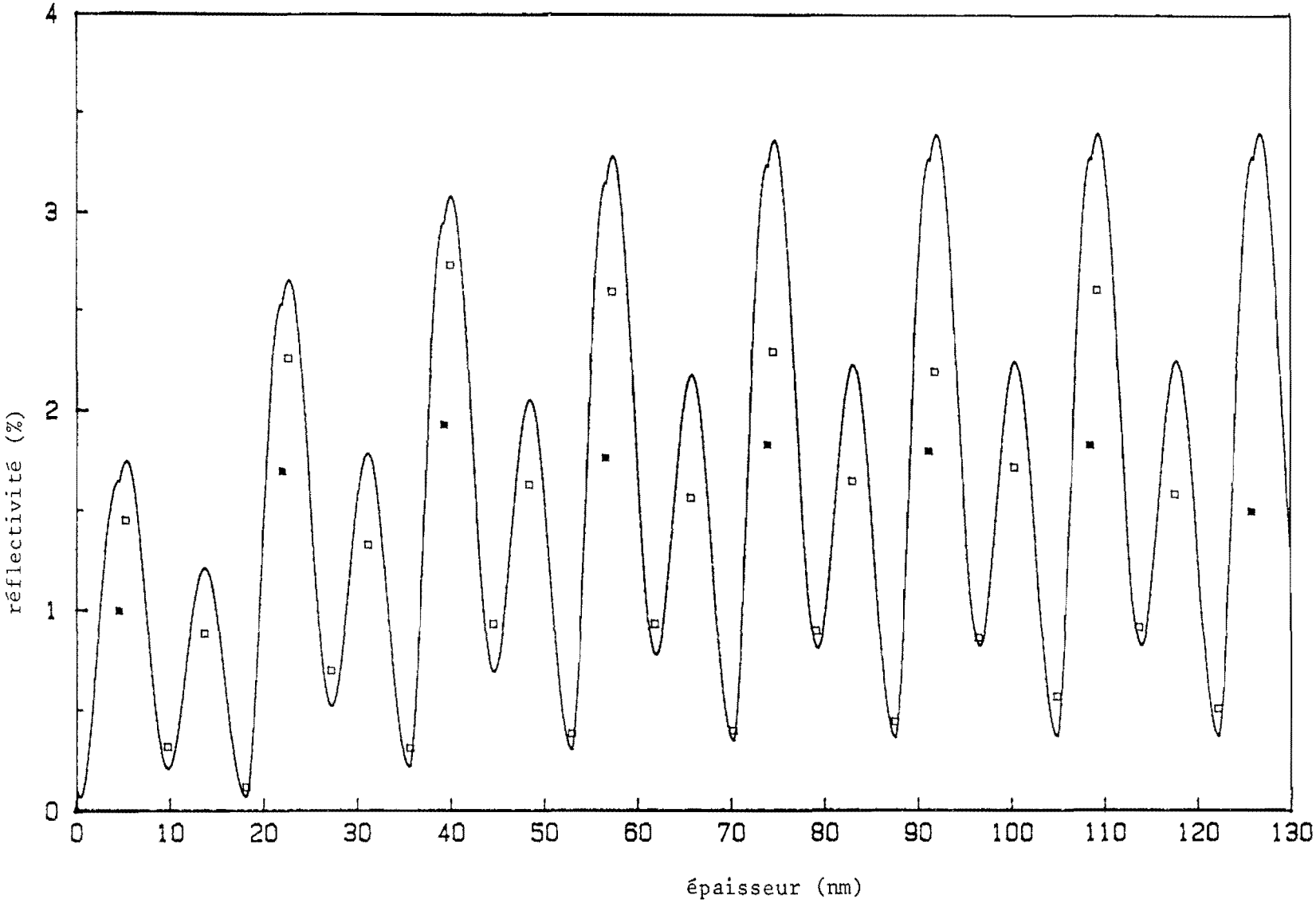


Fig. 52 : Réflectivité calculée d'une multicouche WRe/Si pendant la fabrication (λ_c = 4,47 nm, θ_{inc} = 73,3°, période moyenne : 17,3 nm).
points expérimentaux : ■ maxima du Nb
□ " et minima du Si

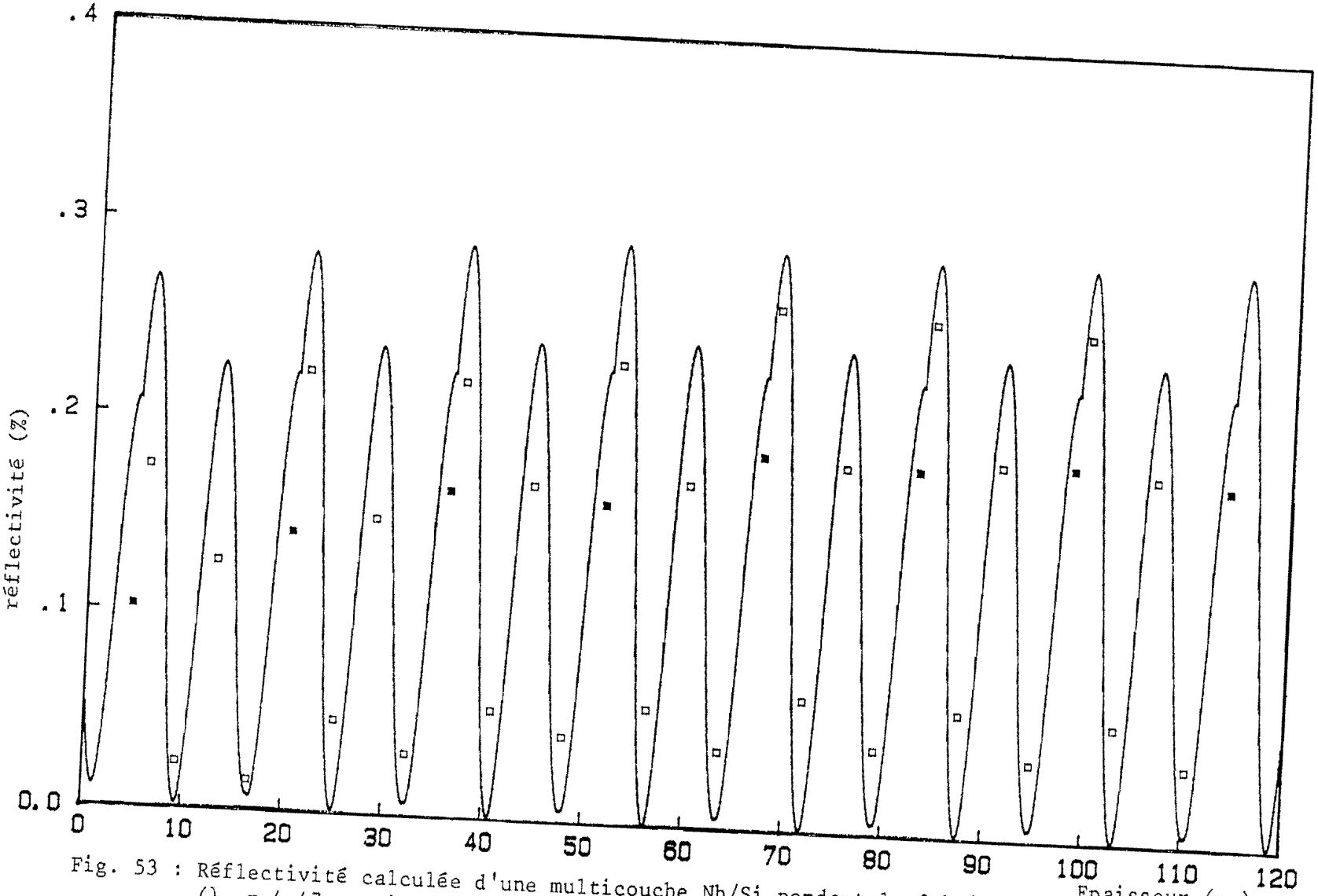
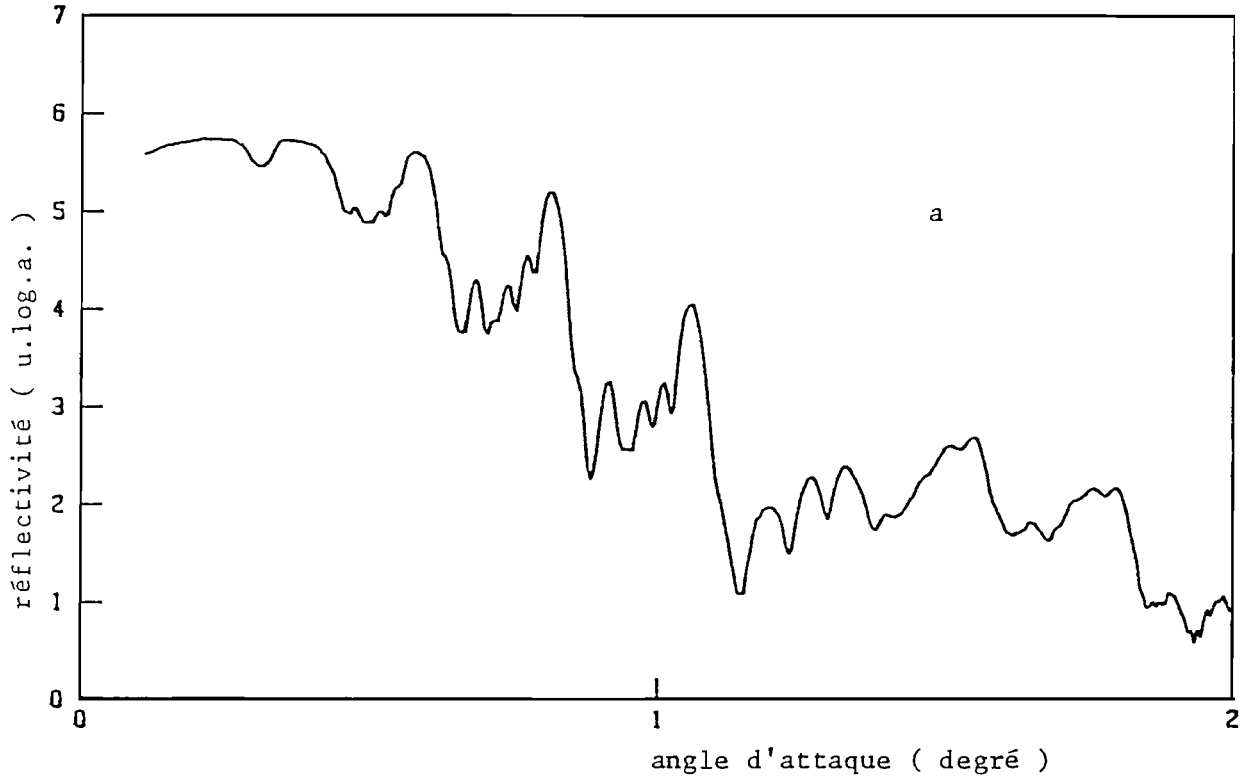


Fig. 53 : Réflectivité calculée d'une multicouche Nb/Si pendant la fabrication (λ_c = 4,47 nm, θ_{inc} = 70,75°, période moyenne : 15,7 nm).
points expérimentaux: ■ maxima du Nb
□ maxima et minima du Si



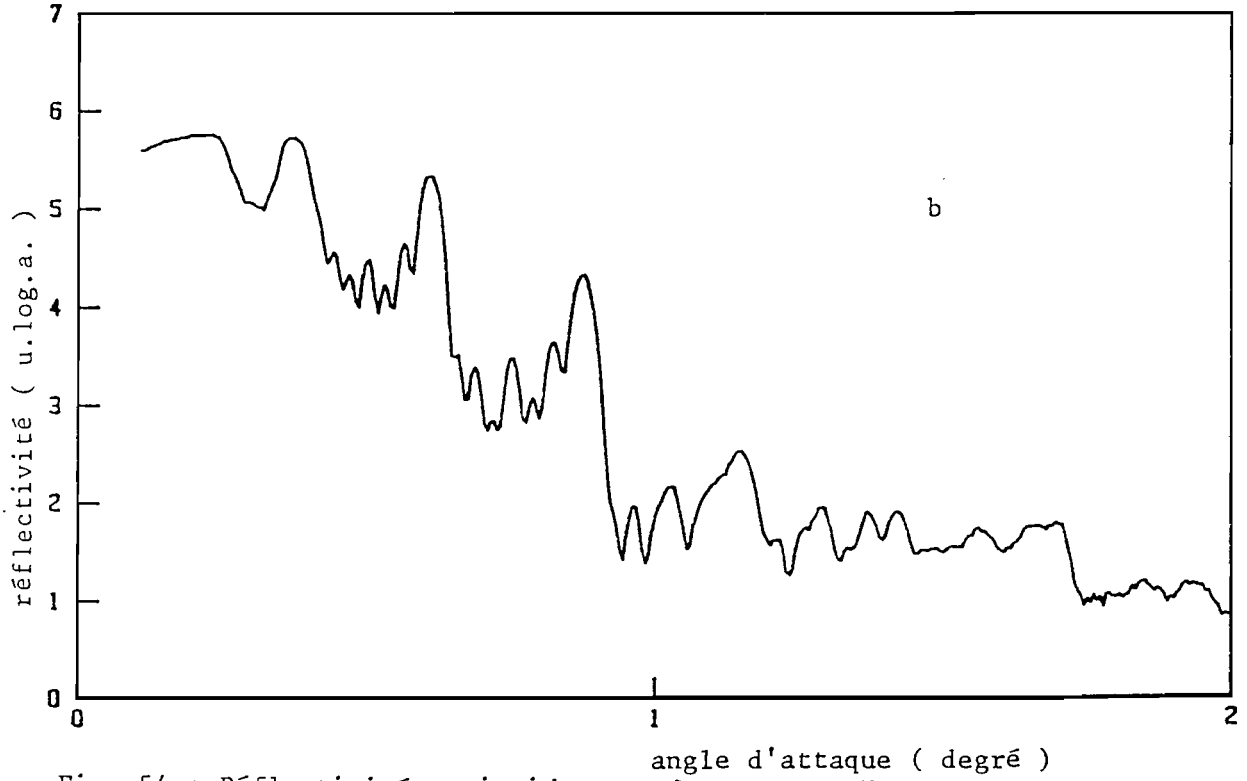


Fig. 54 : Réflectivité en incidence très rasante (λ_c = 0,154 nm) de multicouches réalisées au 2ème ordre de BRAGG pour la raie K_α du carbone (4,47 nm)

a - WRe/Si : 7,5 bicouches, période moyenne = 17,3 nm
b - Nb/Si : 7,5 bicouches, période moyenne = 15,7 nm.

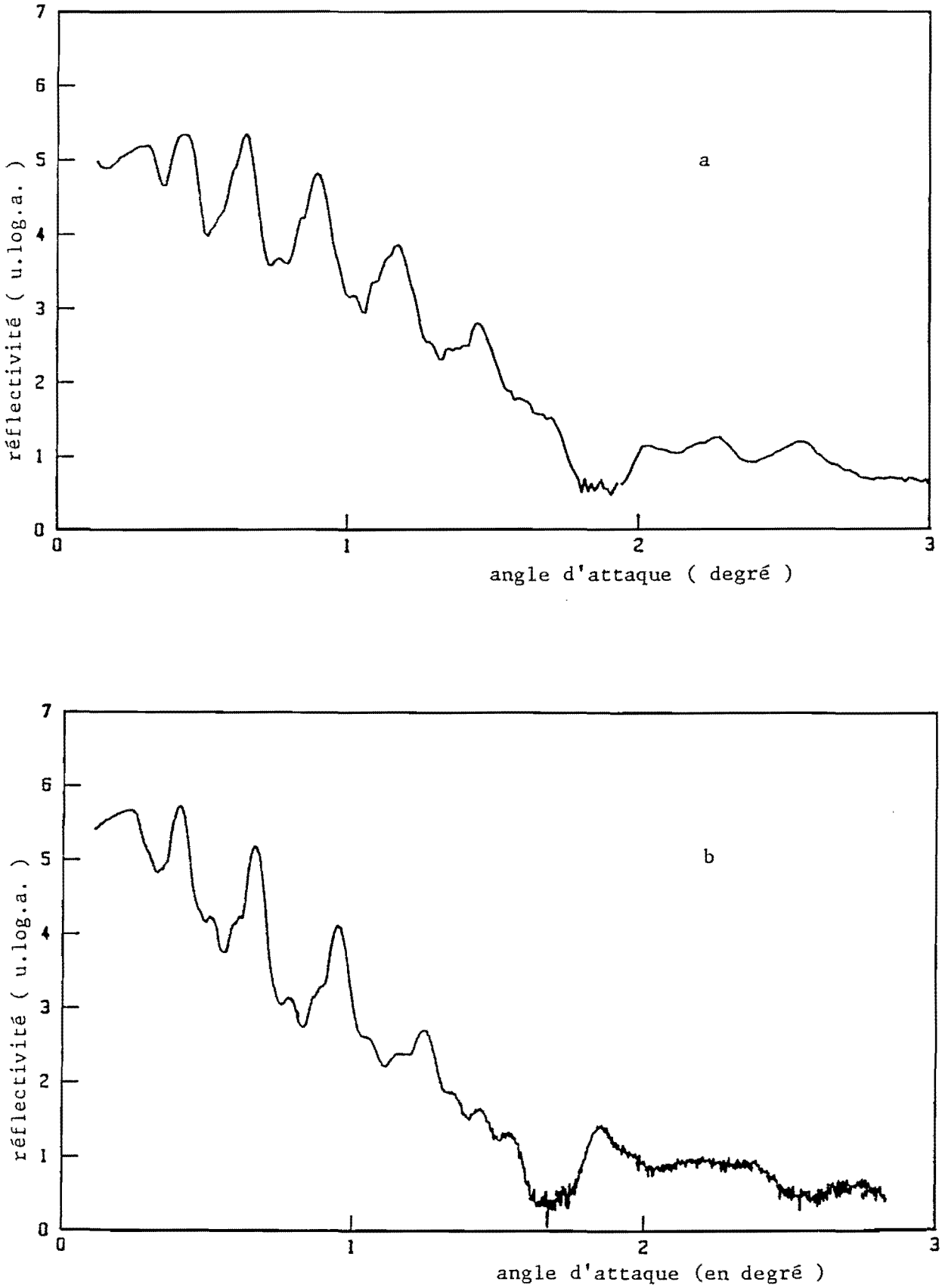


Fig. 55 : Réflectivité en incidence très rasante (λ_c = 0,154 nm) de multicouches réalisées au 3ème ordre de BRAGG pour la raie K_α du carbone (4,47 nm)

a - WRe/Si : 19,5 bicouches, période moyenne = 15,8 nm
b - Nb/Si : 9,5 bicouches, période moyenne = 14,5 nm.

généralement une rugosité plus faible que celles d'éléments lourds. Une diminution de rugosité entraîne alors une augmentation de réflectivité. Ce phénomène a pour conséquence que l'on n'obtient pas pour $\beta = \frac{e_L}{l_L + e_l}$ la valeur de 1/4 lors de la réalisation d'une multicouche au deuxième ordre de BRAGG. Dans le cas de ces deux exemples donnés par les figures 52 et 53 on a :

	β réalisé (2ème ordre)	β optimal (calculé)
WRe/Si	0,208	0,238
Nb/Si	0,229	0,205

TABLEAU 6

Les fig. 54 et 55 donnent les courbes de réflectivité pour $\lambda_c = 0,154$ nm d'empilements WRe/Si et NB/Si réalisés au 2ème et au 3ème ordre de BRAGG. Les deux courbes de la fig. 54 correspondent aux empilements des figures 52 et 53. Dans le cas de la réalisation à ordre 2, si le rapport $\beta = 1/4$ est respecté, le 4ème pic de BRAGG disparaît complètement. β est seulement voisin de cette valeur et comme on le voit dans le cas des deux empilements de la fig. 54, la zone du 4ème pic de BRAGG est perturbée mais le pic reste visible. Lorsqu'on réalise un empilement à l'ordre 3, β est voisin de 1/6, la zone du 6ème pic de BRAGG est modifiée. L'effet produit est très net sur la fig. 55-a correspondant à un empilement WRe/Si ; le 6ème pic de BRAGG disparaît complètement. Dans le cas de la multicouche Nb/Si c'est la région située entre le 5ème et 6ème pic qui est creusée, il y a donc plus de 1/6 de corps lourd dans la période. Au-delà de ces zones caractéristiques on devrait retrouver des pics de BRAGG, mais ceux-ci sont brouillés par les imperfections de la multicouche. Ces courbes

.../...

montrent que les empilements optimisés pour λ_u = 30,4 nm peuvent être réalisés au 2ème ou au 3ème ordre de BRAGG. La répartition d'épaisseur approchant le plus le β optimal, détermine l'ordre de réalisation qui dans ce cas est l'ordre 2.

5 - 2 Test des multicouches en X-UV :

a) Réflectivité des empilements

Ces tests ont été réalisés par J.P. DELABOUDINIERE en utilisant le rayonnement synchrotron du L.U.R.E. Les mesures de réflectivité sont obtenues grâce à un réflectomètre sous vide ; un monochromateur à réseau sélectionne le rayonnement incident jusqu'aux longueurs d'onde d'une dizaine de nm.

a - 1 Multicouche Nb/Si :

La fig. 56 représente la réflectivité mesurée d'une multicouche Nb/Si (9,5 périodes) en fonction de la longueur d'onde. Cet empilement réalisé pour λ_u = 30,4 nm en incidence normale présente un pic de réflectivité situé à 27 nm pour un angle d'incidence d'une quinzaine de degrés. Pour cette valeur de l'incidence, le pic de réflectivité devrait apparaître à 29,3 nm. Le décalage résiduel entre cette dernière longueur d'onde et la valeur mesurée (29,3 - 27 = 2,3 nm) provient de la période de l'empilement (d = 15,3 nm) qui n'est pas exactement adaptée à λ_u = 30,4 nm (d = 16,6 nm). La réflectivité atteinte par cette multicouche est de 13 % alors que la théorie prévoyait 26 % ; la perte de réflectivité est due aux imperfections de l'empilement (rugosité, contamination des matériaux...) si l'on admet que les indices optiques des tables sont corrects. Cette réflectivité représente cependant un bon résultat pour le domaine des rayons X-UV.

Des mesures effectuées sur des empilement WRe/Si et Hf/Si devant être utilisés à 30,4 nm en incidence normale donnent expérimentalement des reflectivités comprises entre 10 et 15 %.

.../...

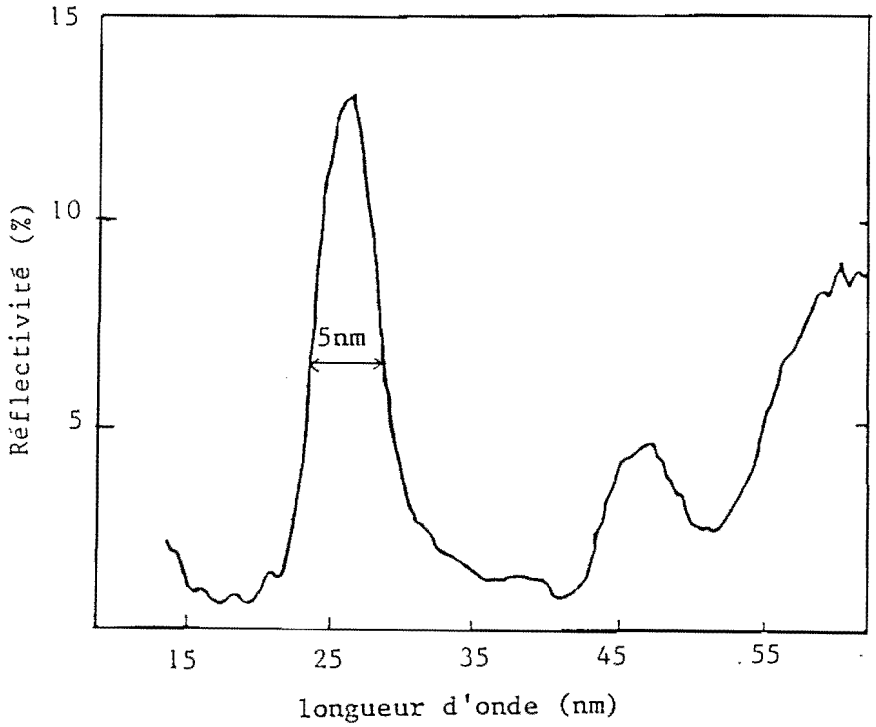


Fig. 56 : Réflectivité mesurée d'une multicouhe Nb/Si (9,5 périodes) en fonction de la longueur d'onde.

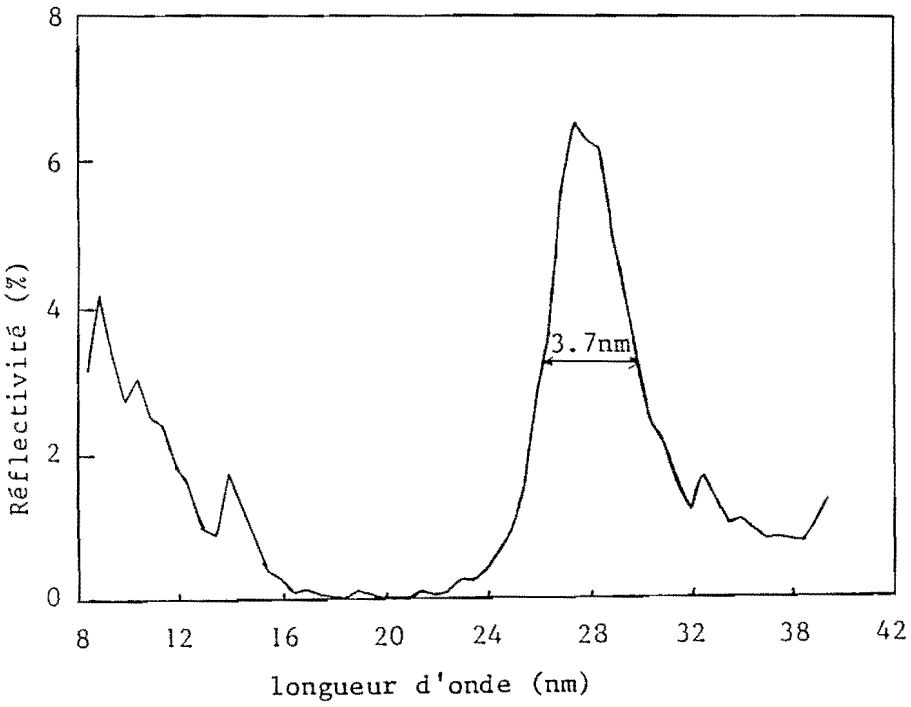


Fig. 57 : Réflectivité mesurée d'une multicouche Mo/Si (7,5 bicouches) en fonction de la longueur d'onde.

a - 2 Multicouches Mo/Si

Récemment nous nous sommes intéressés à un nouveau couple de matériaux, qui d'après T.W. BARBEE (40), donne de très bons résultats : le molybdène et le silicium. Les multicouches réalisées avec ces corps ont théoriquement une réflectivité de 54 % (10 bicouches) pour λ_u = 30,4 nm en incidence normale. Cependant l'intensité du signal de contrôle des épaisseurs pendant la réalisation de la multicouche décroît assez rapidement, ce qui indique que la rugosité du molybdène évaporé en couche mince est assez importante. Cette forte rugosité ainsi que la contamination probable des couches par l'oxygène se répercutent sur la réflectivité ; ainsi nous avons réalisé une multicouche Mo/Si de 8,5 périodes qui ne donne expérimentalement qu'un peu plus de 6 % de réflectivité pour λ = 27 nm (fig. 57).

b) Résistance des multicouches aux rayonnements

b - 1 Résistance au rayonnement solaire

Une étude de résistance des multicouches réalisées pour le télescope a été faite en exposant la moitié de la surface des échantillons à un rayonnement identique au rayonnement solaire pendant quelques heures. Après l'exposition, des mesures de réflectivité ont été effectuées grâce au rayonnement synchrotron. Ainsi la fig. 58 représente la réflectivité d'une multicouche en fonction du point d'impact du rayonnement incident sur la surface de l'empilement ; nous ne voyons aucune différence de réflectivité pouvant provenir d'une dégradation de la multicouche par le rayonnement, entre la zone éclairée et la zone non éclairée.

.../...

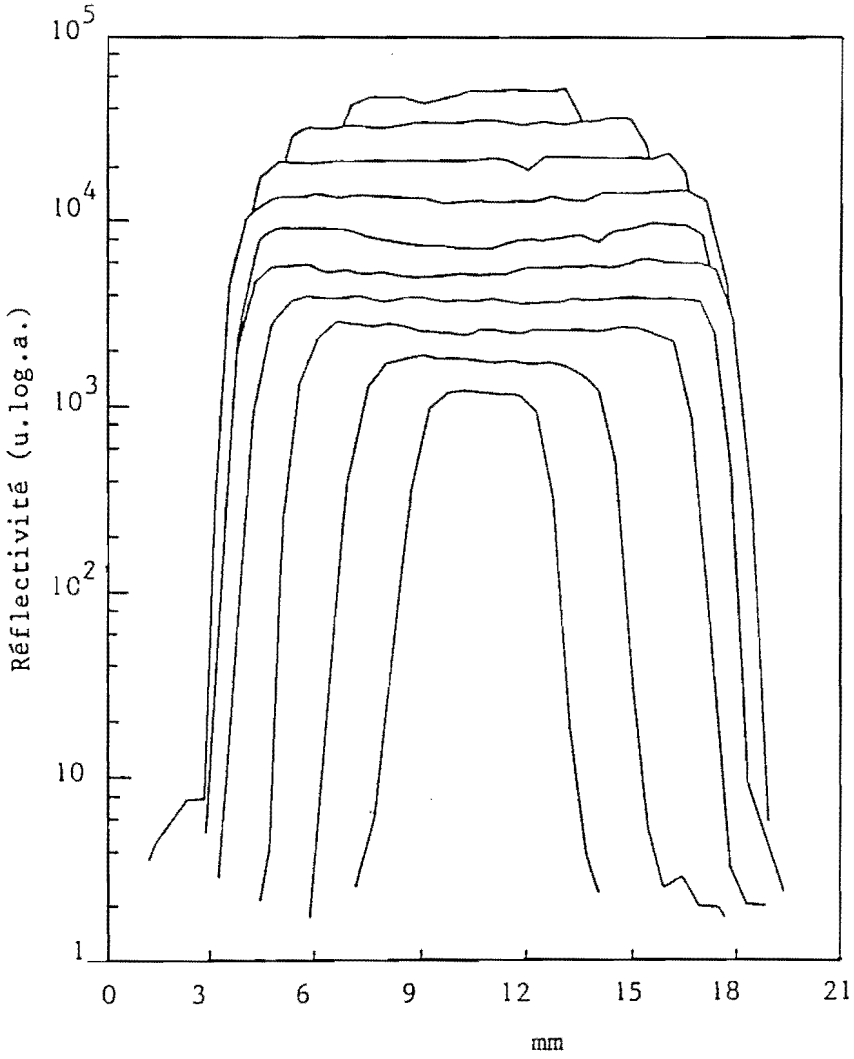


Fig. 58 : Réflectivité d'une multicouche Hf/Si en fonction du point d'impact du rayonnement sur la surface de l'échantillon , la moitié de cette surface ayant été exposée au rayonnement solaire.

b - 2 Résistance au rayonnement X :

Un test de résistance d'une multicouche WRe/si au rayonnement X du Tokamak a été réalisée au Centre d'Etude Nucléaire de Grenoble par W.R. HESS. L'empilement a été exposé à 2 800 décharges plasma d'une durée de 250 ms environ, soit 10 mn de rayonnement X en continu. La fig. 59 représente la réflectivité en incidence très rasante de la multicouche avant et après exposition aux rayons X. Il y a très peu

.../...

de dégradation apparente de cet empilement, qui est composé de 5,5 bicouches et dont la période moyenne est de 7,5 nm. L'exposition au rayonnement X n'a pas modifié la période moyenne car les positions des pics de BRAGG principaux sont inchangées ; cependant il existe une petite différence sur les contrastes et les positions des franges secondaires qui pourrait provenir d'un légère modification des interfaces. L'écart d'intensité entre les deux courbes ne provient pas de la multicouche mais d'une légère différence de réglage de l'appareil.

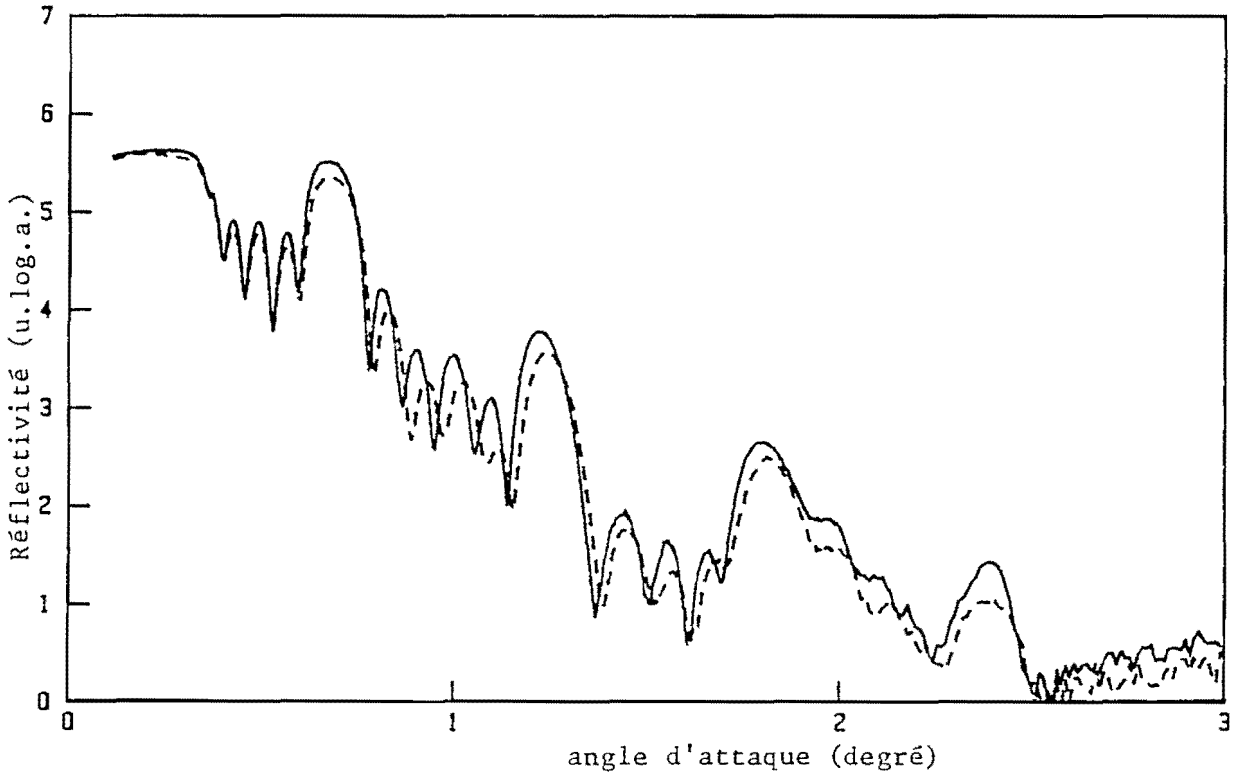


Fig. 59 : Réflectivité (λ_c = 0,154 nm) d'une multicouche WRe/Si en incidence très rasante, avant (———) et après (----) exposition au rayonnement X (5,5 périodes, période moyenne : 7,5 nm).

.../...

La réflectivité et la résistance au rayonnement solaire des empilements que nous réalisons semblent donc bonnes. Les multicouches du télescope seront certainement réalisées avec du tungstène-rhénium et du silicium, qui sont deux matériaux dont nous connaissons bien les propriétés en couches minces.

Les multicouches servant de réflecteurs-monochromateurs dans le domaine des rayons X-UV sont également réfléchissantes dans le visible; il faudra donc ajouter au système optique du télescope un filtre en aluminium afin de supprimer le rayonnement indésirable.

Un miroir primaire et un miroir secondaire doivent être prêts à la fin du mois d'octobre, afin de tester la qualité de l'image dans le visible et de faire un contrôle de diffusion de la lumière dans l'U.V. Ils seront ensuite soumis au rayonnement solaire. Pour la réalisation du télescope il faudra disposer du contrôle des multicouches par le rayonnement synchrotron afin de caler par approches successives le pic de réflectivité des miroirs exactement à λ_u = 30,4 nm.

.../...

CHAPITRE VI

MULTICOUCHES DESTINÉES À L'ÉTUDE DES PLASMAS CRÉÉS PAR LASER (λ_U = 13 NM, 15,5 NM, 18,7 NM).

VI - MULTICOUCHES DESTINEES A L'ETUDE DES PLASMAS CREES PAR LASER (λ_o = 13 nm, 15,5 nm, 18,7 nm)

1 - Application des multicouches à l'étude des plasmas :

Au cours de ce travail nous nous proposons de réaliser des multicouches permettant l'étude des raies émises par un plasma créé par laser. Le but de ces expériences est de déterminer la densité d'électrons dans le plasma afin d'améliorer la compréhension des phénomènes d'interaction laser-matière.

La fig. 60 représente schématiquement le dispositif expérimental utilisé par R. BENATTAR (41) du Laboratoire de Physique des Milieux Ionisés (école polytechnique - Palaiseau). Un laser à impulsions dirigé vers une cible en silicium, en magnésium ou en aluminium crée un plasma, qui se propage vers le laser. Le plasma contient des espèces fortement ionisées (ex : Al^{10+}) qui émettent une grande quantité de raies dans la région des X mous. Une "caméra" placée à 70° par rapport à la direction de propagation des impulsions du laser permet une étude du transport thermique et du déplacement latéral du plasma. L'orifice d'entrée de l'appareil étant très petit (ϕ = 20 µm), le rayonnement visible est éliminé par diffraction. Les rayons X pénètrent dans la chambre noire et se réfléchissent sur la multicouche pour atteindre la plaque photographique. Le rôle de la multicouche est d'isoler la raie que l'on désire étudier du reste du spectre d'émission du plasma. Parmi les nombreuses raies émises par le plasma, trois longueurs d'onde ont été sélectionnées : 13 nm, 15,5 nm et 18,7 nm. Ces expériences nécessitent donc trois multicouches, chacun des empilements étant optimisé pour l'une de ces longueurs d'onde et pour un angle d'incidence de 45°. La plaque photographique enregistre une image du plasma à la longueur d'onde sélectionnée par la multicouche. A partir de mesures d'intensité sur la plaque on peut remonter à la densité électronique du plasma. La boîte noire permet non seulement de supprimer le rayonnement visible mais également de protéger la multicouche contre les projections de matière lors des tirs du laser.

.../...

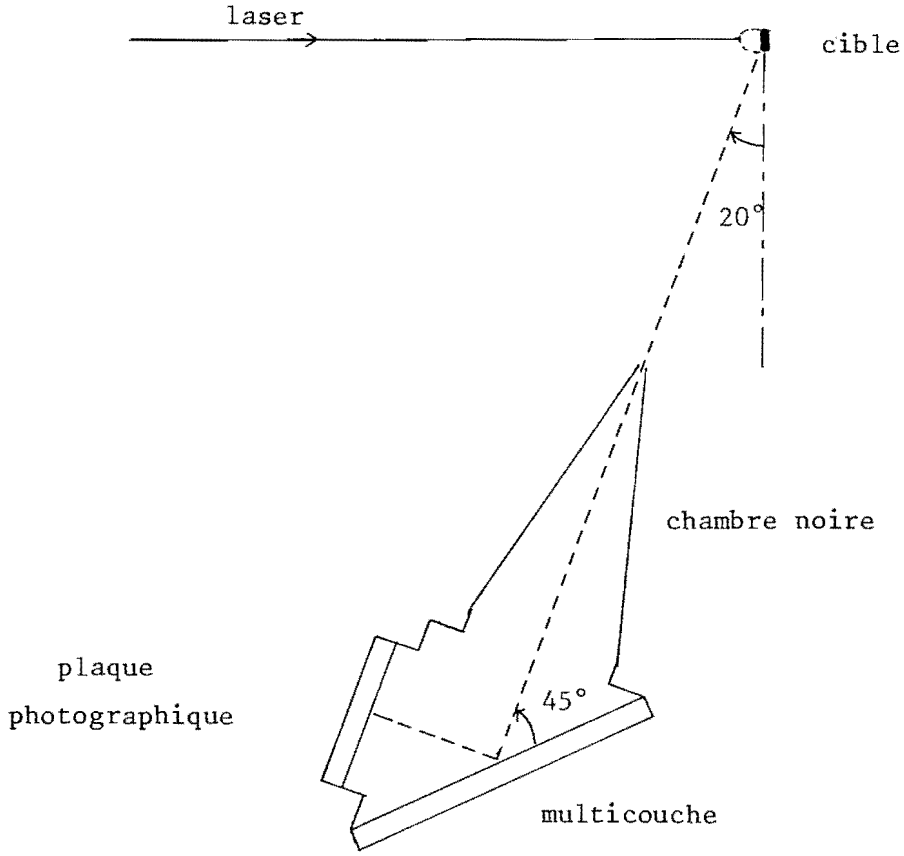


fig.60 : schéma du dispositif expérimental .

On peut augmenter la résolution spatiale (quelques µm) grâce à un second montage utilisant une optique sphérique. Pour ce dispositif les multicouches sont déposées sur des supports sphériques et utilisées en incidence quasi-normale.

2 - Etude théorique des multicouches:

2 - 1 Choix des matériaux :

Le choix de l'élément lourd des multicouches ne pose pas de problèmes ; nous utilisons du tungstène-rhénium ou du niobium. Par contre, le silicium que nous avons employé comme élément léger pour λ = 30,4 nm, s'il est toujours transparent pour λ = 15,5 nm et λ = 18,7 nm ne l'est plus autant pour λ = 13 nm. Le seuil d'absorption $L_{2,3}$ pour cet élément se situant à 12,3 nm d'après B.L. HENKE (7), nous préférons éviter d'utiliser un corps à la limite de son domaine de transparence. Pour λ = 13 nm, nous avons donc déterminé le meilleur couple de matériaux .

La figure 61 donne les courbes de réflectivité d'empilements optimisés à l'ordre 1 pour λ_u = 13 nm et pour un angle d'incidence de 45°. Quatre couples de matériaux sont ainsi testés en prenant du tungstène-rhénium ou du niobium pour le corps lourd et du bore ou du carbone pour l'élément léger. Comme le montre le tableau de la fig. 61 les réflectivités atteintes en prenant du bore pour réaliser les strates transparentes de la multicouche sont meilleures que celles obtenues en employant du carbone : 4,86 % et 4,48 % au lieu de 2,68 % et 3 %. Ces faibles pourcentages sont dus au fait que les indices étant proches de 1, la réflexion à 45° élimine pratiquement l'une des composantes du rayonnement (polarisation p).

Nous réalisons donc ces multicouches en utilisant comme matériau lourd du niobium ou du tungstène-rhénium et comme élément léger du silicium pour les deux plus grandes longueurs d'onde (15,5 nm, 18,7 nm) et du bore pour λ_u = 13 nm.

.../...

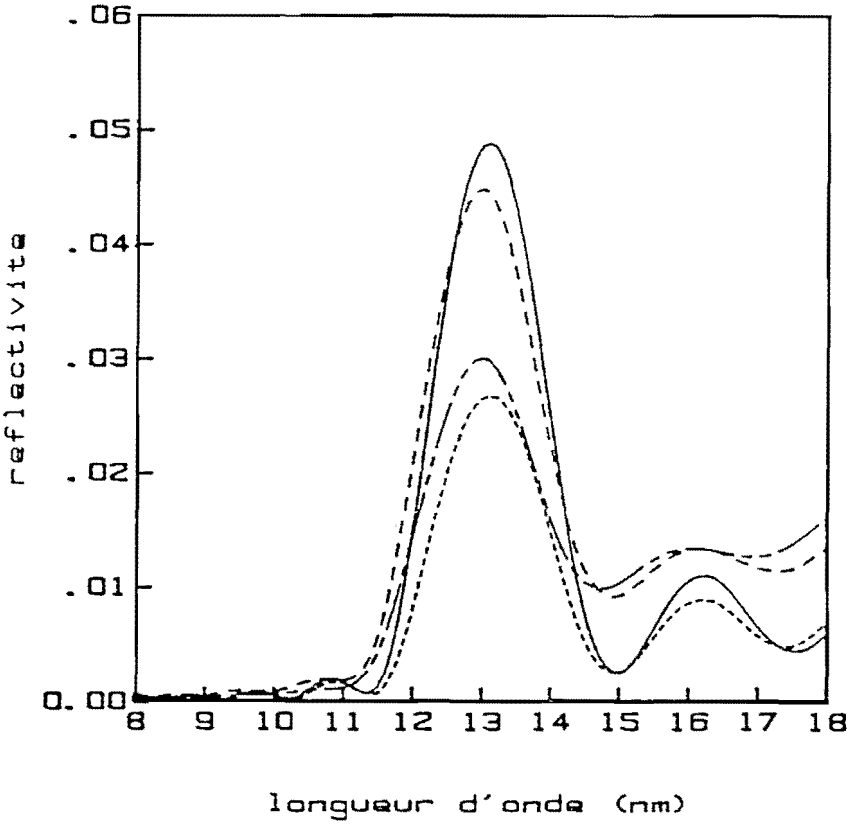


Fig. 61 : Multicouches optimisées à l'ordre 1 pour λ_u = 13 nm et pour une incidence de 45° (6 bicouches).

	Nb/B	W/B	W/C	Nb/C
Symbole graphique	———	- - - - - -	—— - -	---------
période (nm)	10	9,8	9,8	10,1
ep. lourd (nm)	4,9	4,1	4,5	5,1
ep. léger (nm)	5,1	5,7	5,3	5
réflectivité pour 6 bicouches (%)	4,86	4,48	3	2,68
largeur à mi-hauteur (nm)	1,8	1,9	1,9	1,7

Remarque :

Dans ce chapitre, toutes les courbes de réflectivité sont calculées en tenant compte de la variation des indices en fonction de la longueur d'onde. Dans le tableau ci-dessous, nous avons reporté les valeurs obtenues à partir de tables publiées (7) pour les trois longueurs d'onde qui nous intéressent.

λ(nm)	corps	n	k ($\times 10^2$)
13	Nb	0,938	1,2
	W	0,94	3,9577
	B	0,971	0,3605
	C	0,96476	0,6059
15,5	Nb	0,910455	2,319
	W	0,920725	6,966
	Si	0,992077	0,1963
18,7	Nb	0,871497	4,2438
	W	0,878711	12,0236
	Si	0,983041	0,3287

TABLEAU 7

.../...

2 - 2 Calcul des paramètres des multicouches :

a) Multicouches optimisées :

Ce travail comprend la réalisation de deux séries de multicouches. Les figures 62 et 63 donnent respectivement les courbes de réflectivité théorique dans le cas d'une incidence de 45° et dans celui de l'incidence normale. Ces courbes sont obtenues avec les épaisseurs optimales des matériaux reportées dans les tableaux accompagnant les figures. Les calculs sont faits avec le niobium comme élément lourd pour la multicouche fonctionnant sous une incidence de 45° et avec le tungstène-rhénium pour celle utilisée en incidence normale.

On constate que pour les trois empilements la valeur maximale de la réflectivité croît avec la longueur d'onde d'optimisation ; ainsi dans le cas de l'incidence normale on a 7,3 % de réflectivité pour λ = 13 nm, 19 % pour λ = 15,5 nm et 24,2 % pour λ = 18,7 nm. La comparaison des deux figures permet de remarquer que les valeurs de réflectivité obtenues en incidence normale sont légèrement plus élevées que pour une incidence de 45° (sauf pour λ = 15,5 nm). Dans la région des X mous les indices des matériaux sont très proches de 1 ; le coefficient de réflexion en polarisation p est donc pratiquement nul pour un angle d'incidence de 45° , ce qui est défavorable pour la réflectivité de la multicouche.

.../...

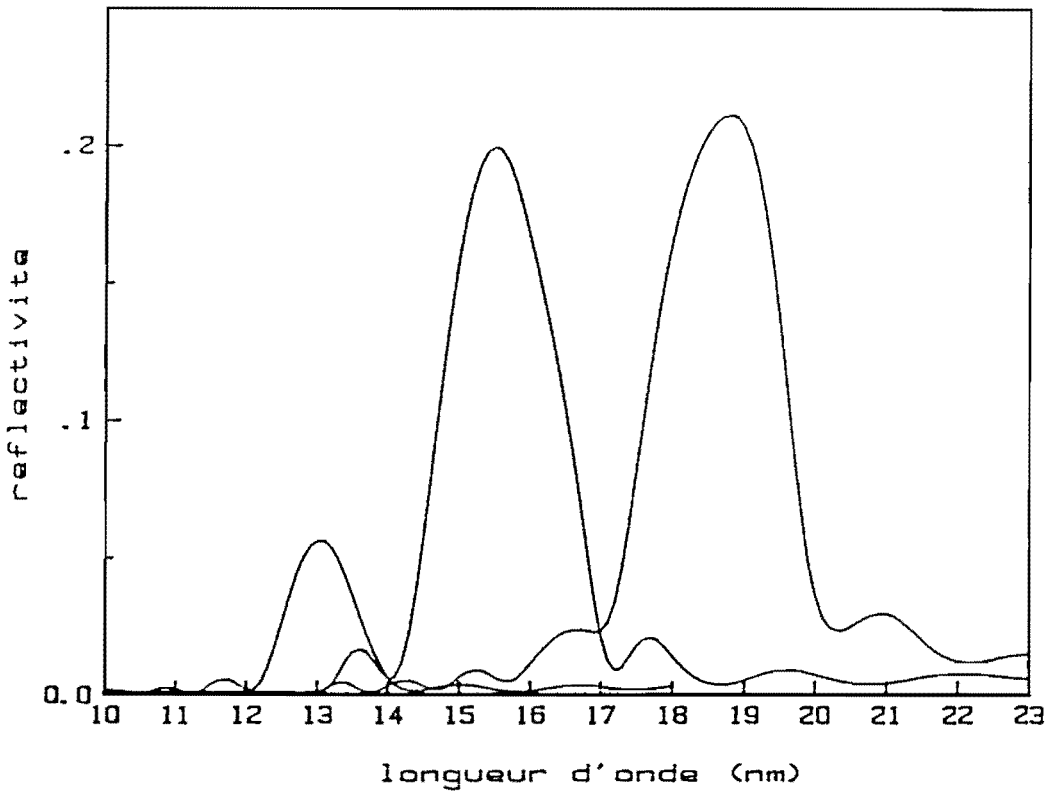


Fig. 62 : Multicouches optimisées pour une utilisation sous une incidence de 45° (10 bicouches).

long. d'onde d'utilisation (nm)	13	15,5	18,7
élément lourd	Nb	Nb	Nb
élément léger	B	Si	Si
période (nm)	10	11,5	14,2
ep. lourd (nm)	2,5	2,9	3,55
ep. léger (nm)	7,5	8,6	10,65
réflectivité pour 10 bicouches (%)	5,6	19,9	21,1
largeur à mi-hauteur (nm)	1,1	1,8	2

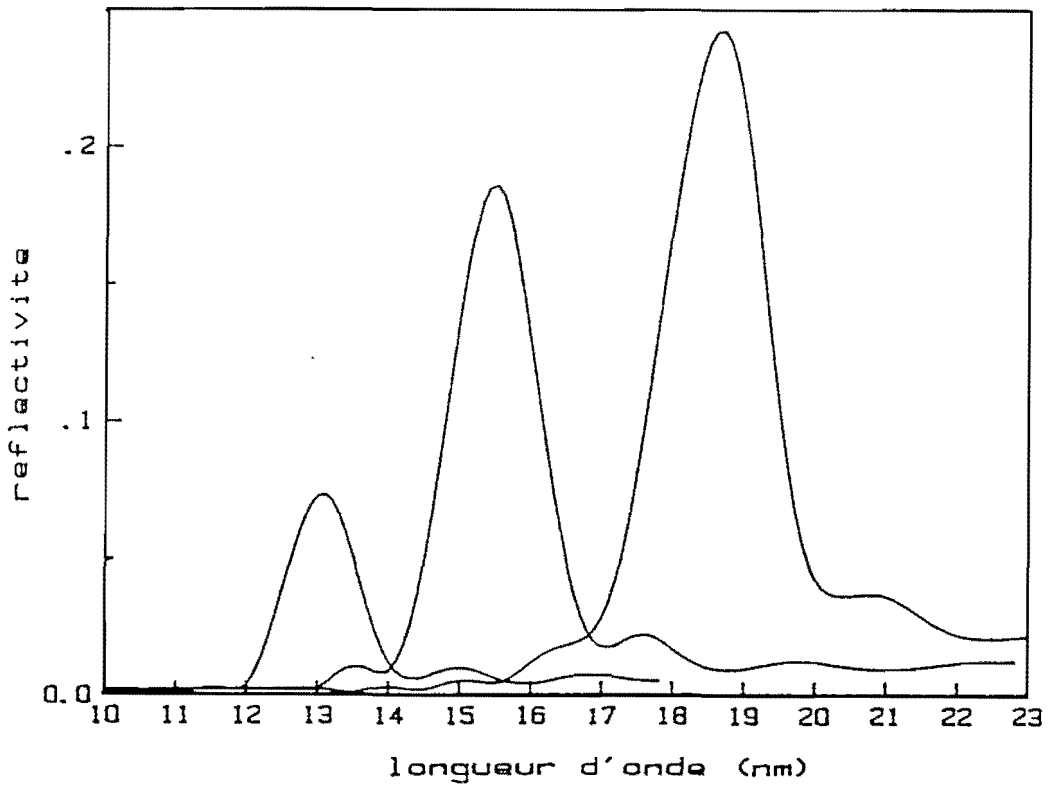


Fig. 63 : Multicouches optimisées pour une utilisation en incidence normale (10 bicouches).

long. d'onde d'utilisation (nm)	13	15,5	18,7
élément lourd	WRe	WRe	WRe
élément léger	B	Si	Si
période (nm)	6,75	7,9	9,6
ep. lourd (nm)	2,8	2,85	3
ep. léger (nm)	3,95	5,05	6,6
réflectivité pour 10 bicouches (%)	7,3	19	24,2
largeur à mi-hauteur (nm)	1,2	1,4	1,7

b) Contraintes expérimentales :

Comme nous l'avons déjà vu dans les chapitres précédents, notre méthode de contrôle des épaisseurs ne permet pas de réaliser la répartition optimale des deux matériaux dans la multicouche. On joue sur l'angle d'attaque θ_n lié à l'ordre de réalisation n pour le contrôle d'épaisseur par réflexion de rayons X mous, pour s'en approcher le plus possible. En ce qui concerne la série de multicouches réalisées pour une incidence de 45° les périodes sont respectivement de 10, 11,5 et 14,2 nm ; les limites de la variation de l'angle de contrôle nous obligent à réaliser ces empilements à l'ordre 2. Dans le cas des multicouches devant être utilisées en incidence normale, nous avons plusieurs possibilités qui sont rassemblées dans le tableau ci-dessous :

TABLEAU 8

	Réflectivité (%)		
		Ordre de réalisation de la multicouche	
λ(nm)	répartition optimale des épaisseurs	n = 1	n = 2
13	7,3	7	
15,5	19	18,7	13,4
18,7	24,2		20,8

Pour λ = 13 nm, la période est assez petite (6,75 nm) pour que l'on puisse réaliser la multicouche à l'ordre 1, la répartition des épaisseurs permet alors d'obtenir une réflectivité (7 %) assez proche de la valeur maximale (7,3 %). Dans le cas de la plus grande longueur d'onde (18,7 nm) la réalisation doit être faite à l'ordre 2 ; la répartition des épaisseurs n'est pas idéale et on perd 3,4 % (24,2 % - 20,8 %) de réflectivité. Contrairement

.../...

aux cas des deux longueurs d'onde précédentes, nous avons le choix entre le 1er et le 2ème ordre pour réaliser la multicouche devant être utilisée à 15,5 nm. D'après les résultats donnés dans le tableau 8 et les courbes de réflectivité de la fig. 64 correspondant aux deux cas de réalisation, nous voyons que la fabrication à l'ordre 1 s'impose. L'ordre 1 permet d'obtenir une réflectivité de 18,7 % très proche de la réflectivité maximale (19 %) contrairement à l'ordre 2 avec lequel on n'a que 13,4 % de réflectivité.

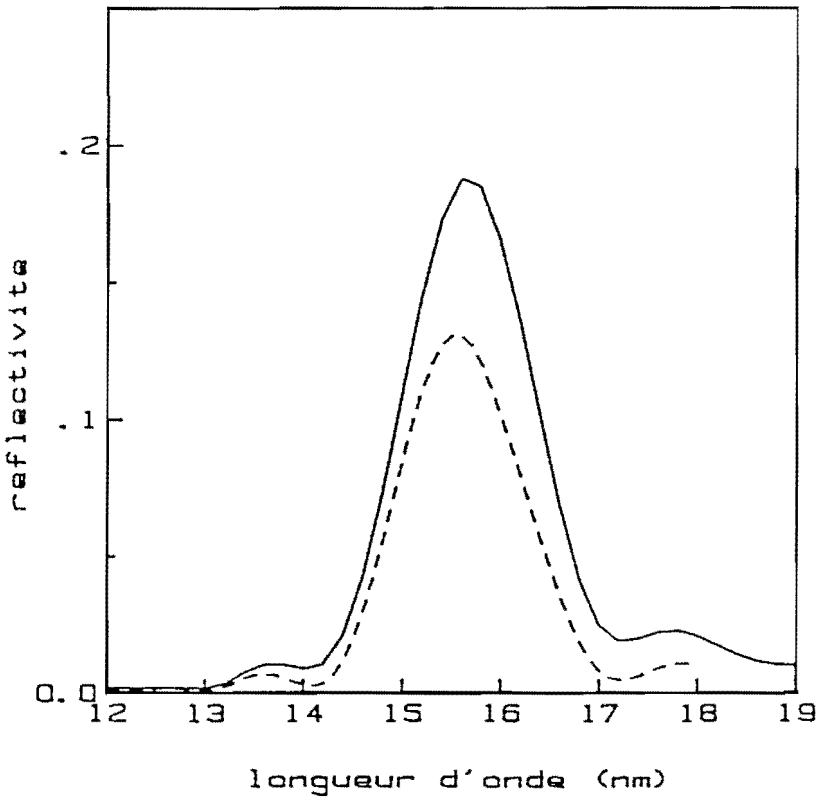


Fig. 64 : Multicouche optimisée pour λ_u = 15,5 nm en incidence normale (10 bicouches)

_____ réalisation au 1er ordre (λ_c = 4,47 nm)
e_W = 2,9 nm e_{Si} = 5,1 nm θ_c = 18°

------ réalisation au 2ème ordre (λ_c = 4,47 nm)
e_W = 1,6 nm e_{Si} = 6,3 nm θ_c = 35,6°

	réflectivité (%)	largeur du pic à mi-hauteur (nm)
1er ordre	18,7	1,6
2ème ordre	13,4	1,4

.../...

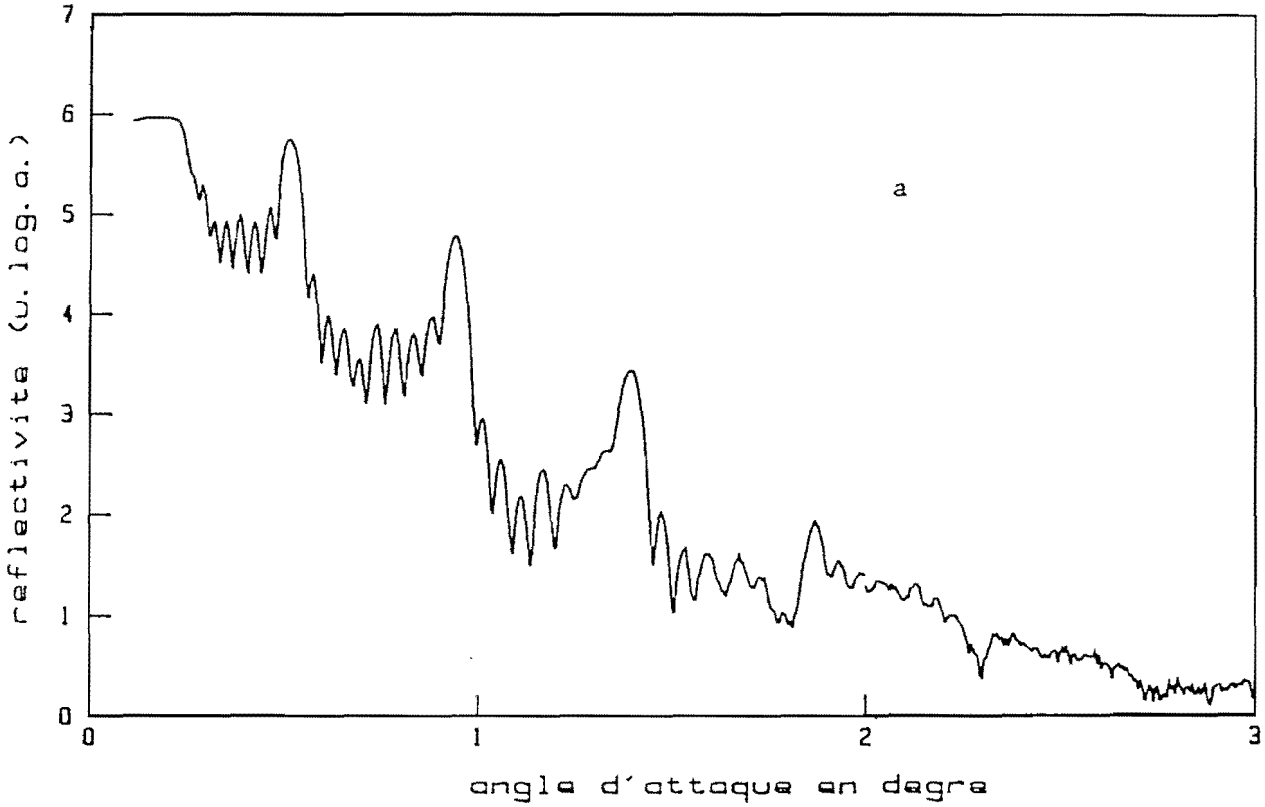
3 - Multicouches réalisées :

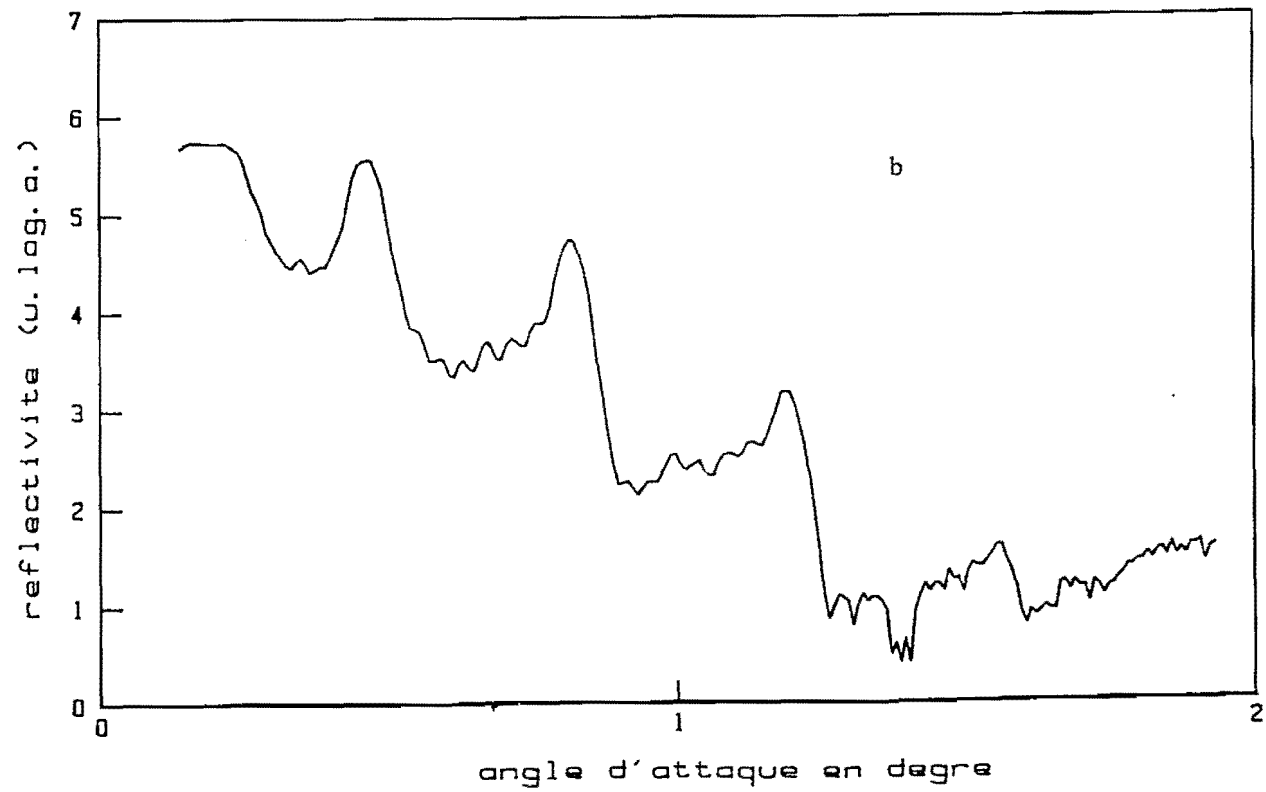
Après la fabrication, les multicouches sont étudiées par réflexion de rayons X rasants (λ_c = 0,154 nm) pour mesurer la période effectivement réalisée.

3 - 1 Multicouches réalisées pour une incidence de 45° :

Les couches expérimentales de la fig. 65 représentent la variation de l'intensité réfléchie en fonction de l'angle d'attaque pour λ_c = 0,154 nm. Les courbes a, b et c correspondent respectivement aux trois multicouches réalisées pour les trois longueurs d'onde d'utilisation : 13 nm, 15,5 nm et 18,7 nm. Les trois empilements sont réalisés avec du niobium comme corps lourd et avec du silicium comme élément léger sauf pour la plus faible longueur d'onde (13 nm) pour laquelle on a utilisé du Bore. Les pics de BRAGG permettent de déterminer la période moyenne. Pour chaque enregistrement les trois premiers pics sont très nets, le quatrième étant écrasé à cause du rapport des épaisseurs des deux matériaux dans la période ($\simeq \frac{1}{4}$). Les valeurs reportées dans le tableau accompagnant les figures montrent que les périodes obtenues sont assez proches des valeurs nominales. Pour les trois longueurs d'onde (13 nm, 15,5 nm, 18,7 nm) on a respectivement un écart de 0,38 nm, 0,08 nm et 0,42 nm entre la période optimale et celle effectivement réalisée. Chaque empilement comporte 9,5 périodes : 8 pics secondaires sont donc présents entre les pics de BRAGG. Ces pics apparaissent nettement sur la fig. 65-a mais sont pratiquement invisibles sur les figures 65-b et 65-c. En effet dans les deux derniers cas les positions des pics principaux nous suffisaient, car seule la valeur moyenne des périodes nous intéressait. La mesure de la réflectivité de rayons X rasants a été faite très rapidement pour ces deux échantillons, la résolution étant alors insuffisante pour faire apparaître les pics secondaires qui permettraient par un dépouillement approfondi, de remonter aux épaisseurs individuelles des couches.

.../...


reflectivite (u. log. a.)
0
1
2
3
4
5
6
7
0
1
2
3
angle d'attaque en degre
a


reflectivite (u. log. a.)
0
1
2
3
4
5
6
7
0
1
2
angle d'attaque en degre
b

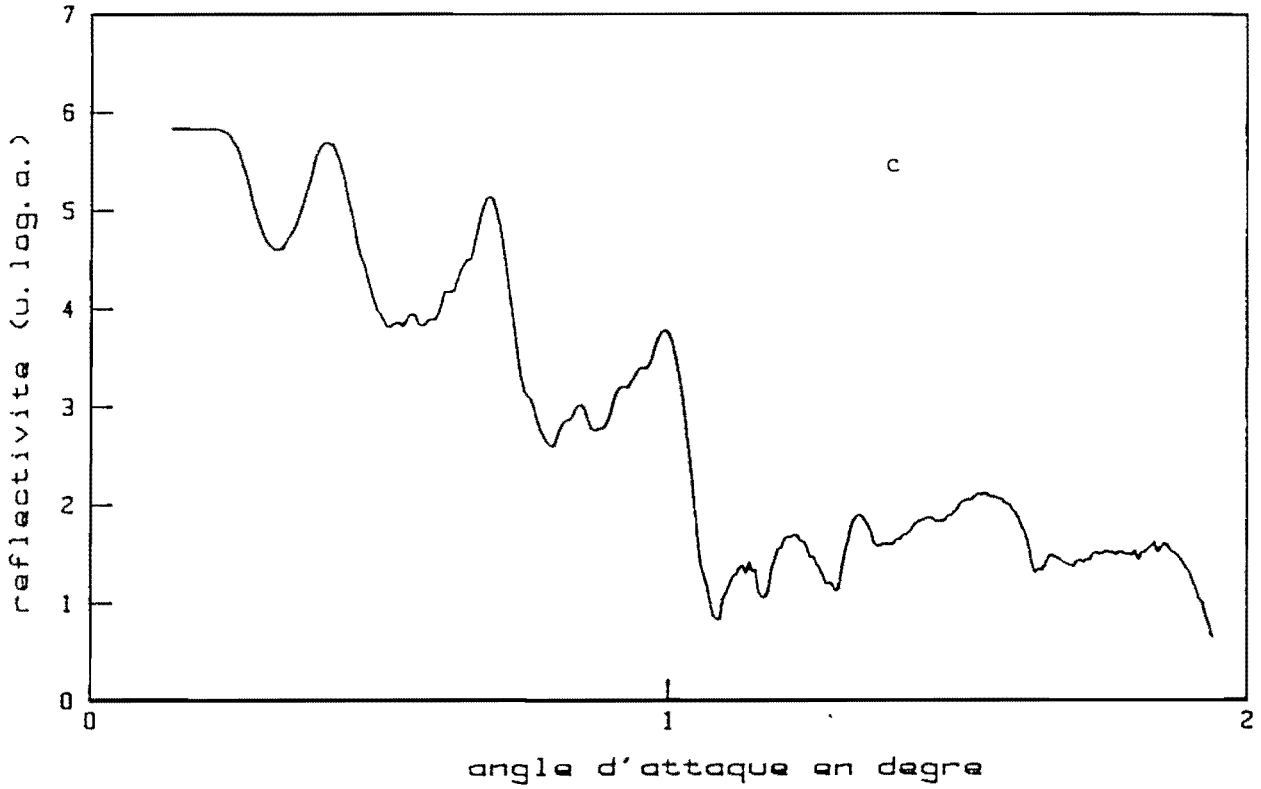
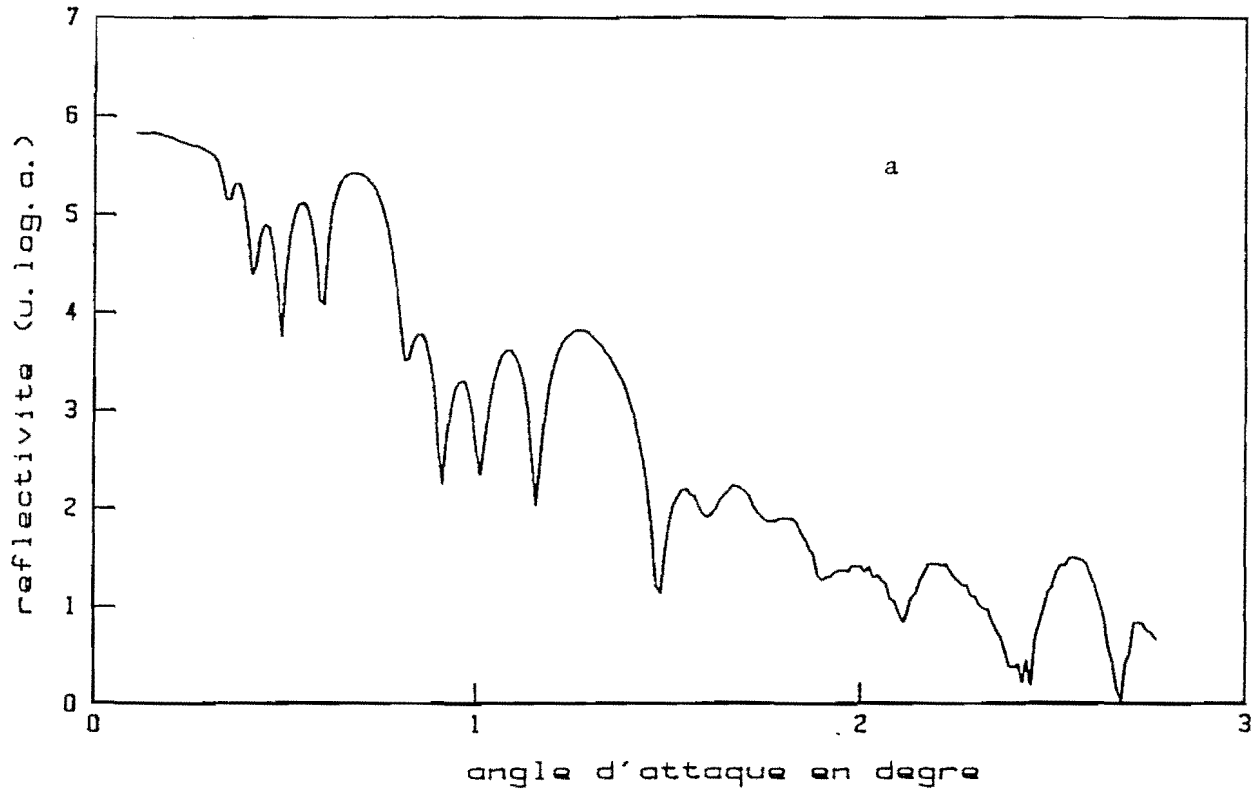
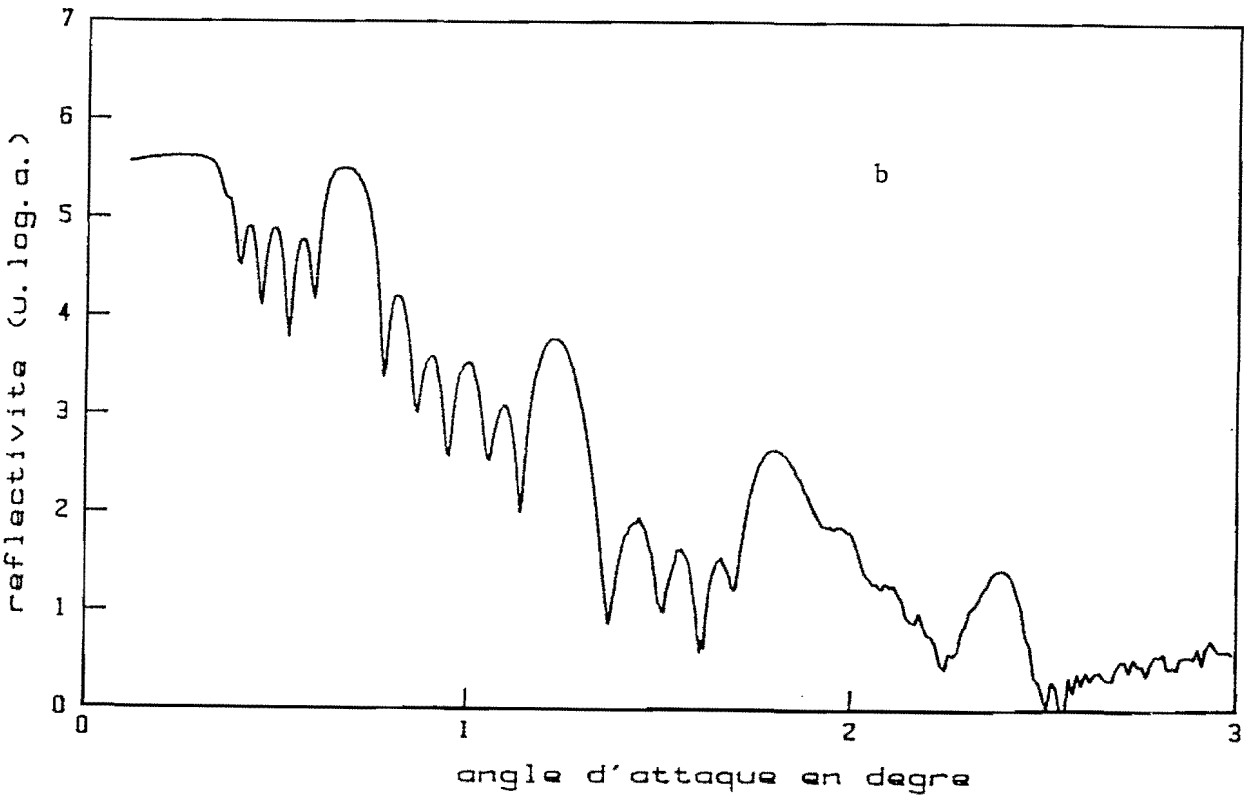


Fig. 65 : Multicouches utilisées sous une incidence de 45° .

	a	b	c
Long. d'onde d'utilisation (nm)	13	15,5	18,7
élément lourd	Nb	Nb	Nb
élément léger	B	Si	Si
ordre de réalisation	2	2	2
nombre de périodes	9,5	9,5	9,5
période optimale (nm)	10	11,5	14,2
période réalisée (nm)	9,62	11,42	13,78

.../...


reflectivite (u. log. a.)
0
1
2
3
4
5
6
7
0
1
2
3
angle d'attaque en degre
a


reflectivite (u. log. a.)
0
1
2
3
4
5
6
7
0
1
2
3
angle d'attaque en degre
b

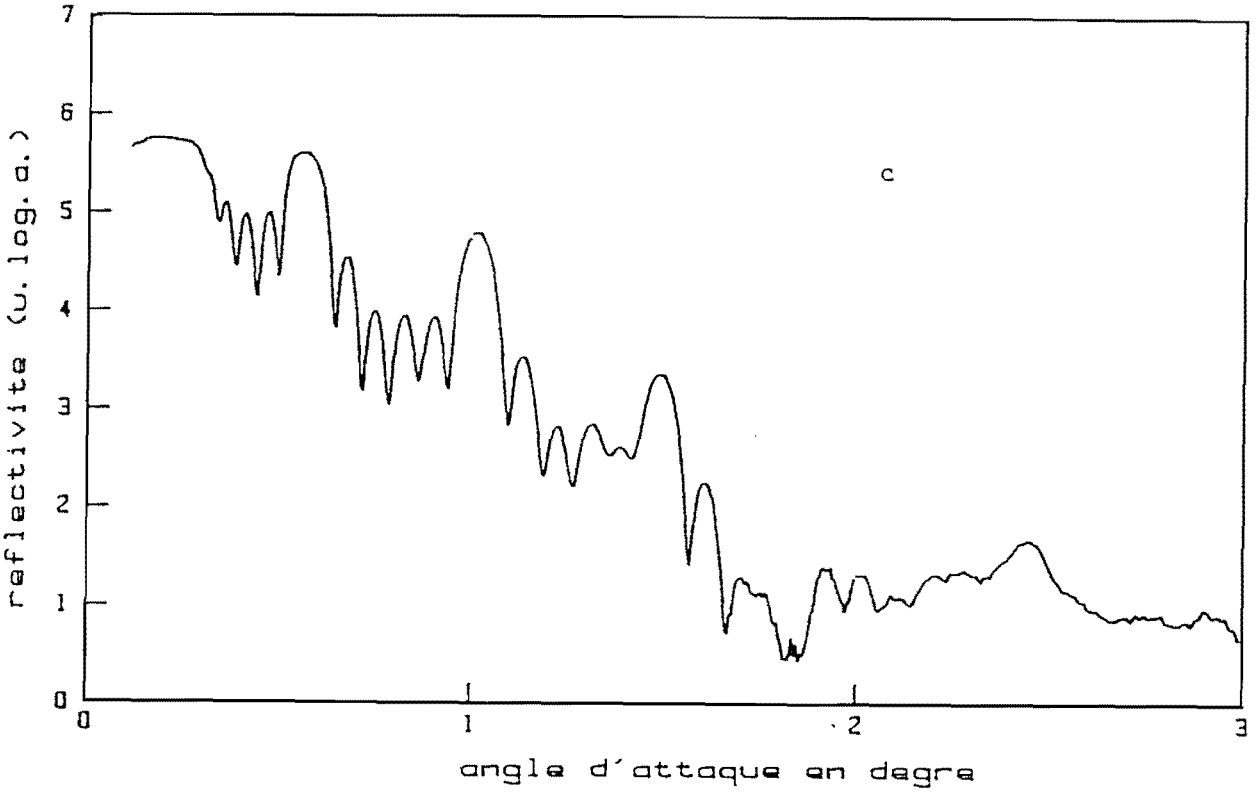


Fig 66 : Empilements réalisés pour l'étalonnage en période des multicouches utilisées en incidence normale.

	a	b	c
Long. d'onde d'utilisation (nm)	13	15,5	18,7
élément lourd	WRe	WRe	WRe
élément léger	B	Si	Si
ordre de réalisation	1	1	2
nombre de périodes	4,5	5,5	5,5
période optimale (nm)	6,75	8	9,6
période réalisée (nm)	7,1	7,48	9,1

.../...

3 - 2 Multicouches réalisées pour l'incidence normale :

Les trois multicouches devant être utilisées en incidence normale sont déposées sur des supports en silice qui sont des portions de sphères. Ces empilements ne peuvent pas faire l'objet d'une étude par réflexion de rayons X rasants qui nécessite des échantillons plans.

Afin d'ajuster l'angle de contrôle de la fabrication, nous avons réalisé trois multicouches (1 pour chaque longueur d'onde) déposées sur des supports plans en float glass. Les périodes obtenues grâce aux courbes de réflectivité pour λ_c = 0,154 nm (fig. 66) sont comparées à celles que l'on désire réaliser et l'angle de contrôle peut alors être ajusté de manière à corriger le décalage. Ces trois échantillons sont réalisés avec du tungstène rhénium comme élément lourd ; les éléments légers sont les mêmes que ceux employés lors de la réalisation des multicouches utilisées à 45° d'incidence : silicium et bore. Les empilements pour λ_u = 13 nm et λ_u = 15,5 nm sont réalisés au 1er ordre tandis que celui pour λ_u = 18,7 nm l'est au 2 ème. Les multicouches comportent 4,5 ou 5,5 périodes, il y a donc 3 ou 4 pics secondaires entre les pics de BRAGG principaux qui sont assez larges. Ce nombre de bicouches suffit largement pour faire une mesure de la période. Pour ces empilements les écarts entre les périodes réalisées et désirées sont de 0,35 nm (λ_u = 13 nm), 0,52 nm (λ_u = 15,5 nm) et 0,5 nm (λ_u = 15,5 nm).

L'angle de contrôle est modifié en conséquence pour la réalisation des multicouches définitives sur les supports sphériques. Le rayon de courbure étant assez grand (200 nm), on peut utiliser le miroir sphérique pour réfléchir le rayonnement X-UV de contrôle.

.../...

4 - Caractérisation des multicouches avec λ_c = 0,154 nm :

Nous ne pouvons pas mesurer systématiquement la réflectivité de chaque multicouche dans ses conditions d'utilisation, car cela nécessite le rayonnement synchrotron du L.U.R.E. Nous contrôlons la qualité des empilements par réflexion de rayons X rasants. Une étude approfondie de la courbe de réflectivité en fonction de l'angle d'attaque nous permet de chiffrer les paramètres de la multicouche et en particulier la rugosité qui influence fortement la réflectivité. Nous avons ainsi choisi de caractériser trois multicouches correspondant aux trois principaux types d'empilements que nous réalisons : tungstène-rhénium/silicium, niobium/silicium et niobium/bore. Cette étude est valable aussi bien pour les multicouches réalisées pour la caractérisation des plasmas que pour celles destinées au télescope (λ_u = 30,4 nm).

4 - 1 Multicouche tungstène-rhénium/silicium :

La multicouche WRe/Si dont les courbes de réflectivité théorique et expérimentale pour λ_c = 0,154 nm sont représentées sur la fig. 67, a servi à étalonner la période du miroir utilisé en incidence normale à la longueur d'onde de 18,7 nm.

Cette multicouche comprend 5,5 périodes, les 4 pics secondaires sont bien définis entre les pics de BRAGG. Les paramètres utilisés pour le calcul de la réflectivité à 0,154 nm sont rassemblés dans le tableau 9.

Les valeurs des épaisseurs utilisées pour la simulation de la courbe ont été obtenues par calcul de la réflectivité pour λ_c = 4,47 nm pendant la croissance de la multicouche, sauf pour la couche d'extrême surface.

Les constantes optiques des couches de WRe correspondent à un sous oxyde voisin de $(WRe)_3O$; elles ont été déterminées par l'étude d'une couche simple de WRe présentée dans le chapitre précédent. L'indice du silicium ne correspond pas tout à fait à celui du matériau pur (δ = 7,437 10^{-6}, β = 17,287 10^{-8} la différence provient certainement d'une très faible porosité ou d'une très légère oxydation.

.../...

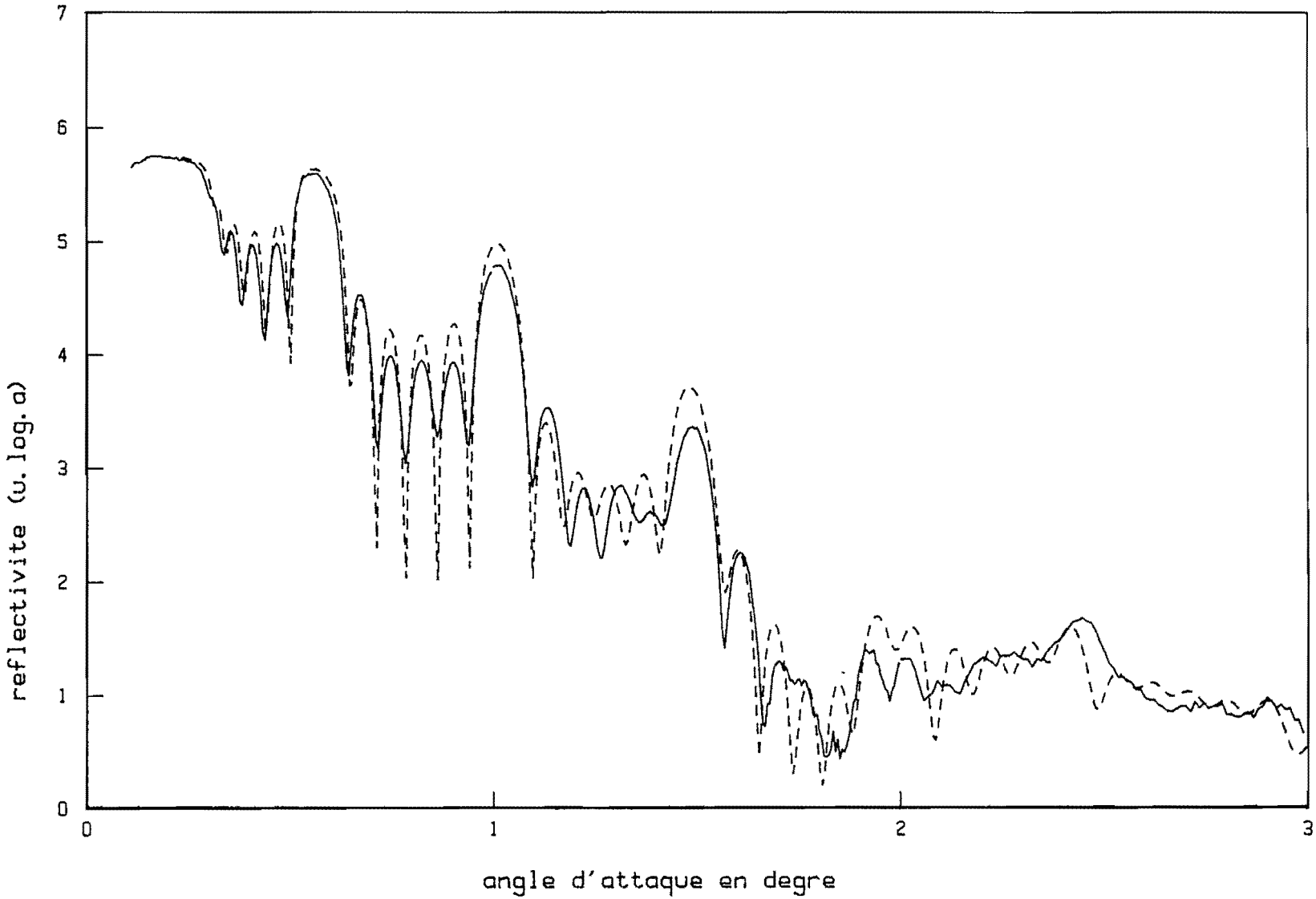


Fig. 67 : Réflectivité théorique (-----) et expérimentale (———) en incidence très rasante d'une multicouche WRe/Si de période moyenne 9,1 nm (λ_c = 0,154 nm).

	épaisseur (nm)	rugosité (nm)	$\delta(x\ 10^6)$	$\beta(x\ 10^6)$
substrat	-	0,4	7,7	0,12
WRe 1	2,48	0,45	39,8	3,5
Si 1	7,0	0,65	6,75	0,166
WRe 2	2,18	0,75	39,8	3,5
Si 2	7,0	0,65	6,75	0,166
WRe 3	2,10	0,75	39,8	3,5
Si 3	7,0	0,65	6,75	0,166
WRe 4	2,05	0,75	39,8	3,5
Si 4	7,0	0,65	6,75	0,166
WRe 5	2,0	0,75	39,8	3,5
Si 5	7,05	0,65	6,75	0,166
WRe 6	1,95	1,0	39,8	3,5
	1,4	1,0	18,25	1,2

TABLEAU 9 : Valeurs des paramètres utilisés pour la simulation de la réflectivité de la multicouche WRe/Si (fig. 67).

La couche d'extrême surface a dû être divisée en deux parties à cause de la couche superficielle d'oxyde, qui se forme après la sortie de l'échantillon de l'enceinte à vide. On représente cette oxydation par un film de $(WRe)O_3$ ayant une épaisseur de 1,4 nm et une rugosité de 1 nm. Cette rugosité plus forte que celles des autres couches provient certainement d'inhomogénéités dans la couche d'oxyde.

Pour toutes les simulations de réflectivité à 0,154 nm, on notera que le contraste des pics secondaires est plus faible sur la courbe expérimentale que sur la courbe théorique, qui ne tient pas compte de la résolution instrumentale

.../...

du goniomètre. Les différences observables entre les deux courbes de la fig. 67 peuvent être atribuées à de petites erreurs sur les épaisseurs individuelles des couches et sur les valeurs des rugosités interfaciales. Bien que non parfait ce modèle est très proche de la réalité et il nous permet de conclure à la bonne qualité des multicouches tungstène-rhénium/silicium, les rugosités étant relativement faibles (de 0,4 nm à 1 nm).

Il est important d'évaluer l'effet des imperfections (rugosité, contamination, dispersion d'épaisseur) de la multicouche que nous avons réalisée sur la réflectivité à λ = 18,7 nm en incidence normale. La fig. 68 donne la courbe de réflectivité théorique de cet empilement en fonction de la longueur d'onde. La comparaison de cette courbe avec celle de la multicouche parfaite correspondante montre une perte de réflectivité de 16,7 % (R_{opt} = 18 % → R = 15 %) et un déplacement de la position du maximum de 0,9 nm (18,7 - 17,8). Les largeurs à mi-hauteur des deux pics sont égales (2,6 nm). Il est à noter que ces courbes ont été calculées avec des indices fixes en fonction de la longueur d'onde, qui sont reportés dans le tableau 10.

Corps	densité (g/cm^3)	n	k(x 10^2)
Si	2,33	0,983041	0,329
"Si"	2,11	0,984585	0,2983
W	19,3	0,878711	12,0236
$(WRe)_3O$	16,67	0,871345	12,7135
$(WRe)O_3$	7,2	0,910959	7,6028

TABLEAU 10 : Indices des matériaux pour λ = 18,7 nm, calculés à partir des tables publiées (7).

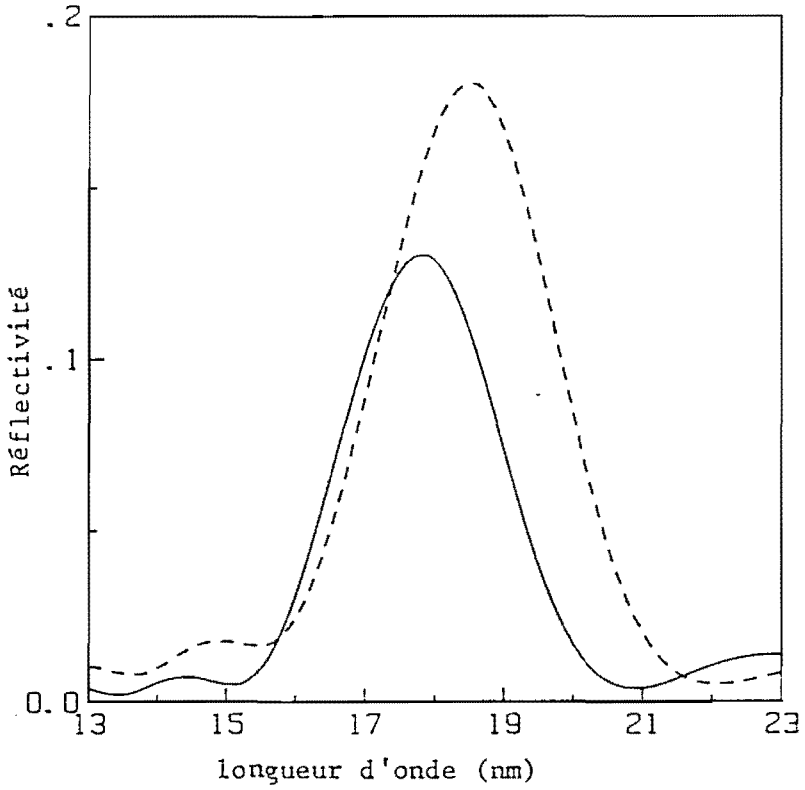


Fig. 68 : Réflectivité d'une multicouche WRe/Si (5,5 bicouches, λ_u = 18,7 nm, θ_{inc} = 0) en fonction de la longueur d'onde.

----- multicouche optimisée
——— " réalisée.

4 - 2 Multicouche niobium/silicium :

La fig. 69 donne les courbes de réflectivité calculée et expérimentale d'une multicouche niobium/silicium réalisée pour une longueur d'onde de 15,5 nm et une incidence de 45°.

Les trois pics secondaires visibles entre les pics principaux montrent que l'empilement est fait de 4,5 périodes. Les paramètres utilisés pour la simulation de la courbe de réflectivité expérimentale sont donnés dans le tableau 10.

	épaisseur (nm)	rugosité (nm)	δ (x 10^6)	β (x 10^6)
F.G.	∞	0,6	7,7	0,12
Couche sup. du F.G.	4,5	0,5	6	0,1
Nb 1	3,6	0,65	20,75	1,2
Si 1	9,3	0,7	6,75	0,15
Nb 2	2,75	0,75	17,5	1
Si 2	9	0,8	6,75	0,15
Nb 3	2,85	0,85	17,5	1
Si 3	8,6	0,9	6,75	0,15
Nb 4	2,8	0,95	17,5	1
Si 4	8,35	1	6,75	0,15
Nb 5	2,8	1,05	17,5	1

TABLEAU 11 : Valeurs des paramètres utilisés pour la simulation de la réflectivité de la multicouche Nb/Si (fig. 69).

.../...

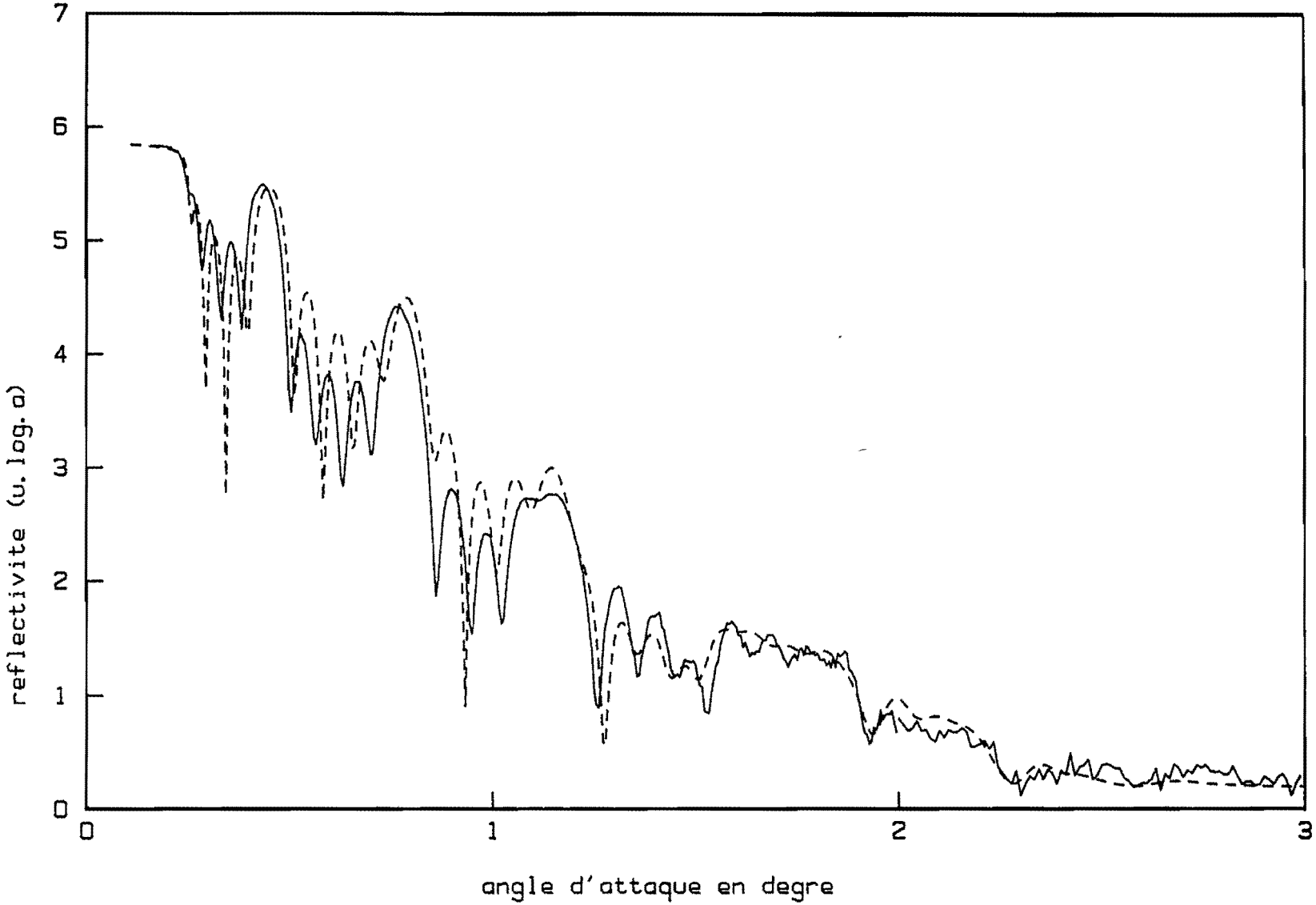


Fig. 69 : Réflectivité théorique (-----) et expérimentale (———) en incidence très rasante d'une multicouche Nb/Si de période moyenne 11,6 nm (λ_c = 0,154 nm).

La multicouche est réalisée à l'ordre 2, la répartition d'épaisseur des deux matériaux dans la période produit donc la disparition du 4ème pic de BRAGG. Le 3ème pic de BRAGG a perdu de l'intensité à cause de la dispersion des épaisseurs individuelles des couches.

L'indice du silicium est le même que dans l'étude précédente. La première couche de niobium est oxydée en NbO tandis que les suivantes ont une densité légèrement plus faible que NbO. Cette différence semble montrer qu'il y a une intéraction entre le niobium et le support en float glass. Prendre du NbO pour la première couche à pour effet de renforcer le contraste des franges secondaires entre le 2ème et le 3ème pic de BRAGG et augmente la réflectivité au début de la courbe. Il est également nécessaire de tenir compte de la couche superficielle du float glass pour renforcer l'intensité dans la zone du 4ème pic de BRAGG.

Cette simulation n'est qu'un modèle approché, le contraste des pics secondaires n'étant pas reproduit exactement. Cependant l'allure générale de la courbe calculée est assez proche du résultat expérimental. L'évolution de rugosité qui joue principalement sur la contraste des pics secondaires, est un peu trop idéale, trop régulière. Le désaccord peut également provenir d'une évolution des indices due à une différence de compacité des matériaux provenant des variations des conditions d'évaporation, dont nous ne tenons pas compte.

De la même manière que pour la multicouche WRe/Si dans le paragraphe précédent, nous comparons la réflectivité calculée de cet empilement Nb/Si avec celle de l'empilement parfait correspondant dans les conditions d'utilisation (λ_u = 15,5 nm, θ_{inc} = 45°). La fig. 70 donne les courbes de réflectivité pour la polarisation s ; les indices étant proches de 1, le coefficient de réflexion pour la polarisation p est pratiquement nul. On constate pour l'empilement réalisé une perte de réflectivité de 50,5 % (R_{opt} = 29,7 % → R = 14,7 %); le pic est déplacé de 0,3 nm (λ_p = 15,8 nm) et les largeurs à mi-hauteur sont pratiquement égales (3,2 et 3 nm). Les indices invariants avec la longueur d'onde utilisés pour ce calcul sont rassemblés dans le tableau 12.

.../...

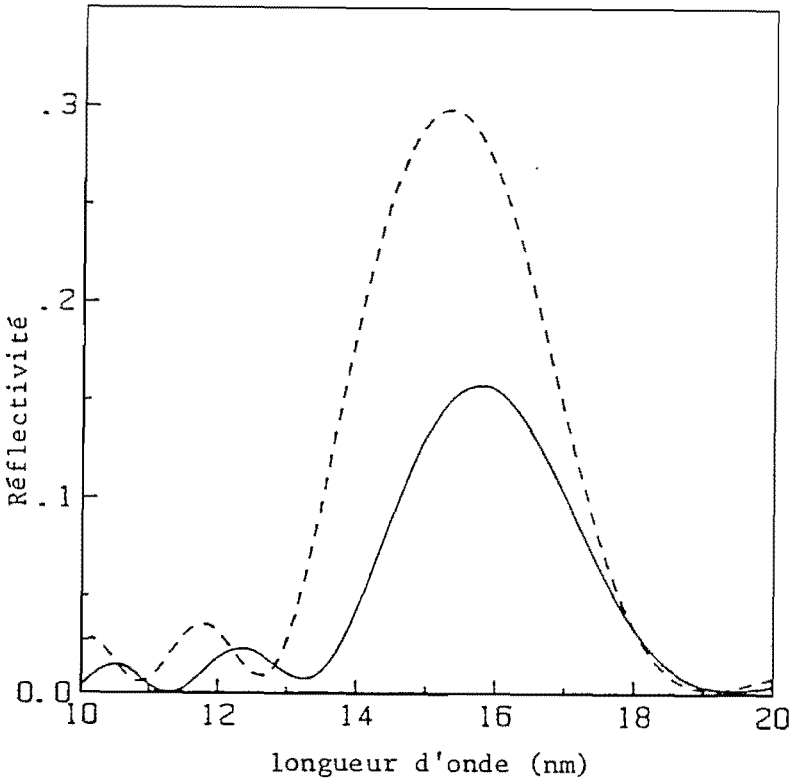


Fig. 70 : Réflectivité en polarisation s d'une multicouche Nb/Si (4,5 bicouches, λ_u = 15,5 nm, θ_{inc} = 45°) en fonction de la longueur d'onde.

------ multicouche optimisée
——— " réalisée.

corps	densité (g/cm^3)	n	k ($\times 10^2$)
Si	2,33	0,992077	0,1963
"Si"	2,11	0,992349	0,1777
Nb	8,4	0,892349	2,2957
NbO	7,27	0,905601	2,7891

TABLEAU 12 : Indices des matériaux pour λ = 15,5 nm calculés à partir des tables publiées (7).

.../...

4 - 3 Multicouche niobium/bore :

La simulation de la courbe de réflectivité en incidence très rasante de la fig. 71 correspond à l'empilement devant être utilisé à la longueur d'onde de 13 nm avec une incidence de 45°.

Les épaisseurs individuelles des couches et les rugosités interfaciales permettant d'obtenir la courbe de réflectivité théorique sont réunies dans le tableau 11.

	épaisseur (nm)	rugosité (nm)
F.G.	∞	0,4
Nb 1	3,2	0,55
B 1	7,5	0,65
Nb 2	2,15	0,675
B 2	7,5	0,7
Nb 3	2,15	0,725
B 3	7,5	0,75
Nb 4	2,15	0,775
B 4	7,5	0,8
Nb 5	2,15	0,825
B 5	7,5	0,85
Nb 6	2,15	0,875
B 6	7,5	0,9
Nb 7	2,15	0,925
B 7	7,5	0,95
Nb 8	2,15	0,975
B 8	7,5	1
Nb 9	2,15	1,025
B 9	7,5	1,05
Nb 10	2,15	1,075

TABLEAU 11 : Valeurs des épaisseurs et des rugosités pour la simulation de la réflectivité de la multicouche Nb/B (fig. 71).

.../...

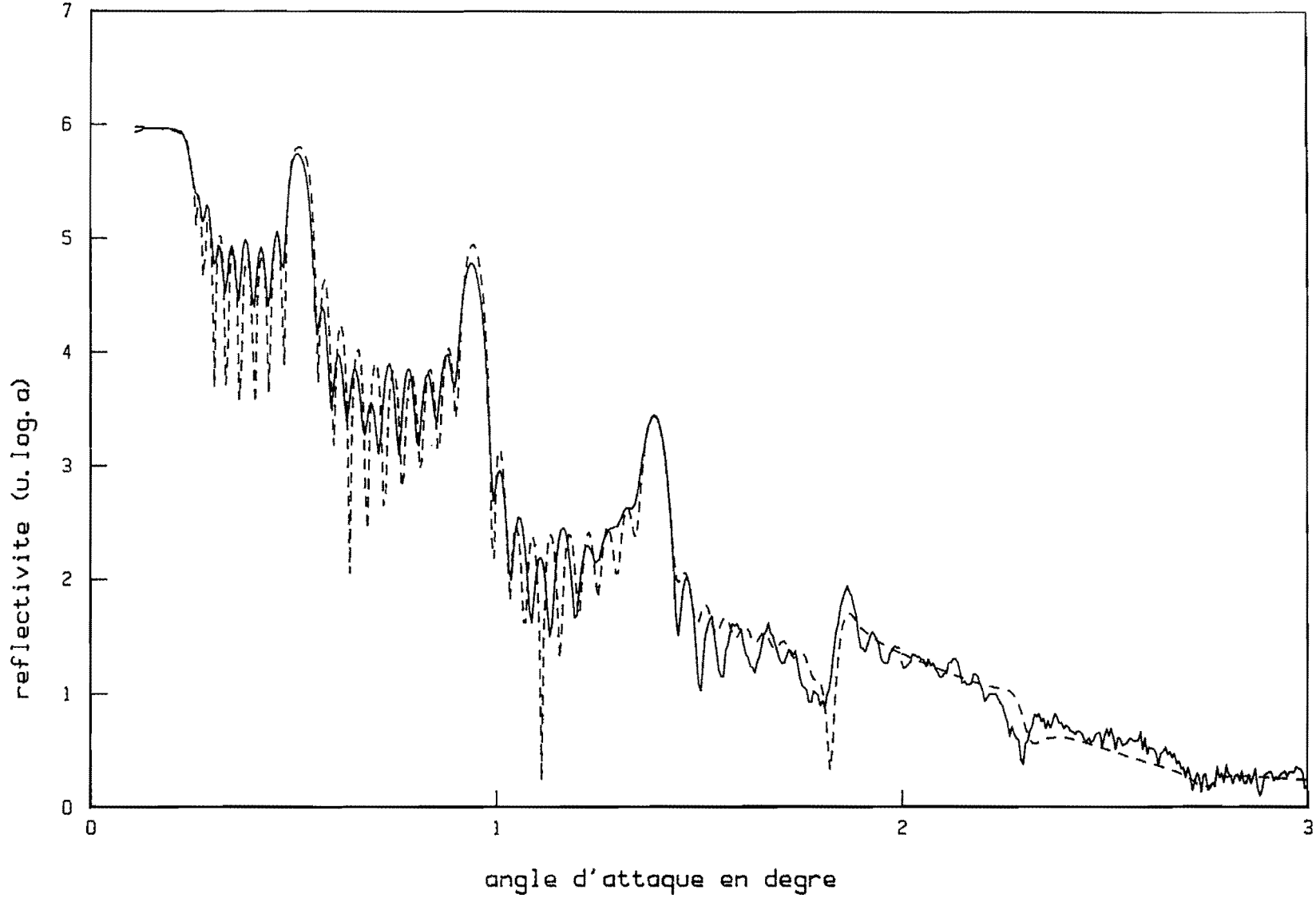


Fig. 71 : Réflectivité théorique (-----) et expérimentale (———) en incidence très rasante d'une multicouche Nb/B de période moyenne 9,6 nm (λ_c = 0,154 nm).

Cette multicouche réalisée au 2ème ordre est composée de 9,5 périodes. Les trois premiers pics de BRAGG sont très nets, le quatrième disparaît à cause du rapport des épaisseurs dans la période ($\beta \simeq \frac{1}{4}$). L'épaisseur est de 7,5 nm pour les couches de bore et de 2,15 nm pour celles de niobium, sauf pour Nb1. L'épaisseur plus forte de la première couche (3,2 nm) est due à la méthode de contrôle d'épaisseur par réflectométrie in situ.

Pour obtenir une bonne coïncidence entre les courbes expérimentale et théorique nous devons utiliser l'indice du NbO (δ = 20,75 10^{-6}, β = 1,2 10^{-6}) pour les couches réflectrices. Les constantes optiques des couches transparentes correspondent à un bore poreux de 1,99 g/cm^3 de densité (δ = 5,8 . 10^{-6}, β = 1,87 . 10^{-8}), la densité normale du bore étant de 2,34 g/cm^3.

La différence existant principalement entre les pics secondaires des deux courbes provient du fait que nous ne tenons pas compte de la dispersion des épaisseurs et que l'évolution de rugosité que nous considérons est un peu simpliste. Le grand nombre de paramètres correspondant aux 19 couches rend difficile un accord parfait. Cette simulation montre cependant qu'il y a croissance de la rugosité (de 0,4 nm à 1,075 nm) avec le nombre de couches.

Le calcul de la réflectivité de cet empilement Nb/B dans les conditions d'utilisation (λ_u = 13 nm, θ_{inc} = 45°) et avec les paramètres déterminés par la caractérisation à λ_c = 0,154 nm donne un bon résultat : 13,4 % de réflectivité en polarisation s pour λ = 12,7 nm (fig. 72), ce qui correspond pratiquement à la réflectivité de la multicouche optimisée : 13,9 % ; le coefficient de réflexion est pratiquement nul pour la polarisation p. Les largeurs à mi-hauteur des deux pics sont égales (1,2 nm) et l'écart entre les deux maxima n'est que de 0,3 nm. Les indices utilisés pour ce calcul sont rassemblés dans le tableau 14.

.../...

corps	densité (g/cm^3)	n	k(x 10^2)
B	2,34	0,971349	0,3754
"B"	1,99	0,975634	0,3193
Nb	8,4	0,938	1,2
NbO	7,27	0,932660	1,6606

TABLEAU 14 : Indice des matériaux pour λ = 13 nm calculés à partir des tables publiées (7).

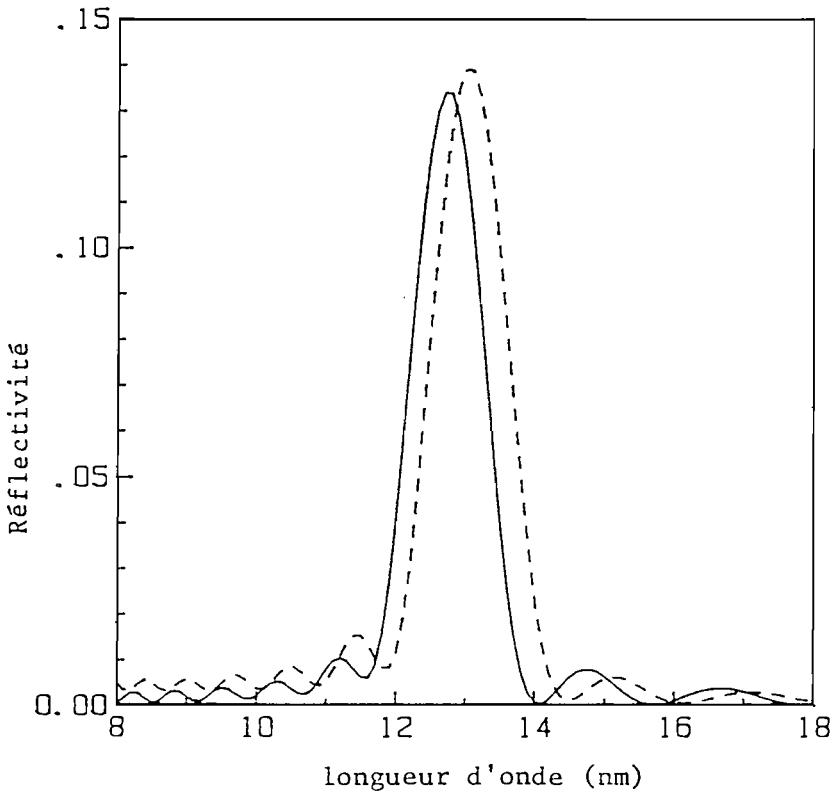


Fig. 72 : Réflectivité en polarisation s d'une multicouhe Nb/B (9,5 bicouches, λ_u = 13 nm, θ_{inc} = 45°) en fonction de la longueur d'onde.

----- multicouche optimisée

_____ " réalisée.

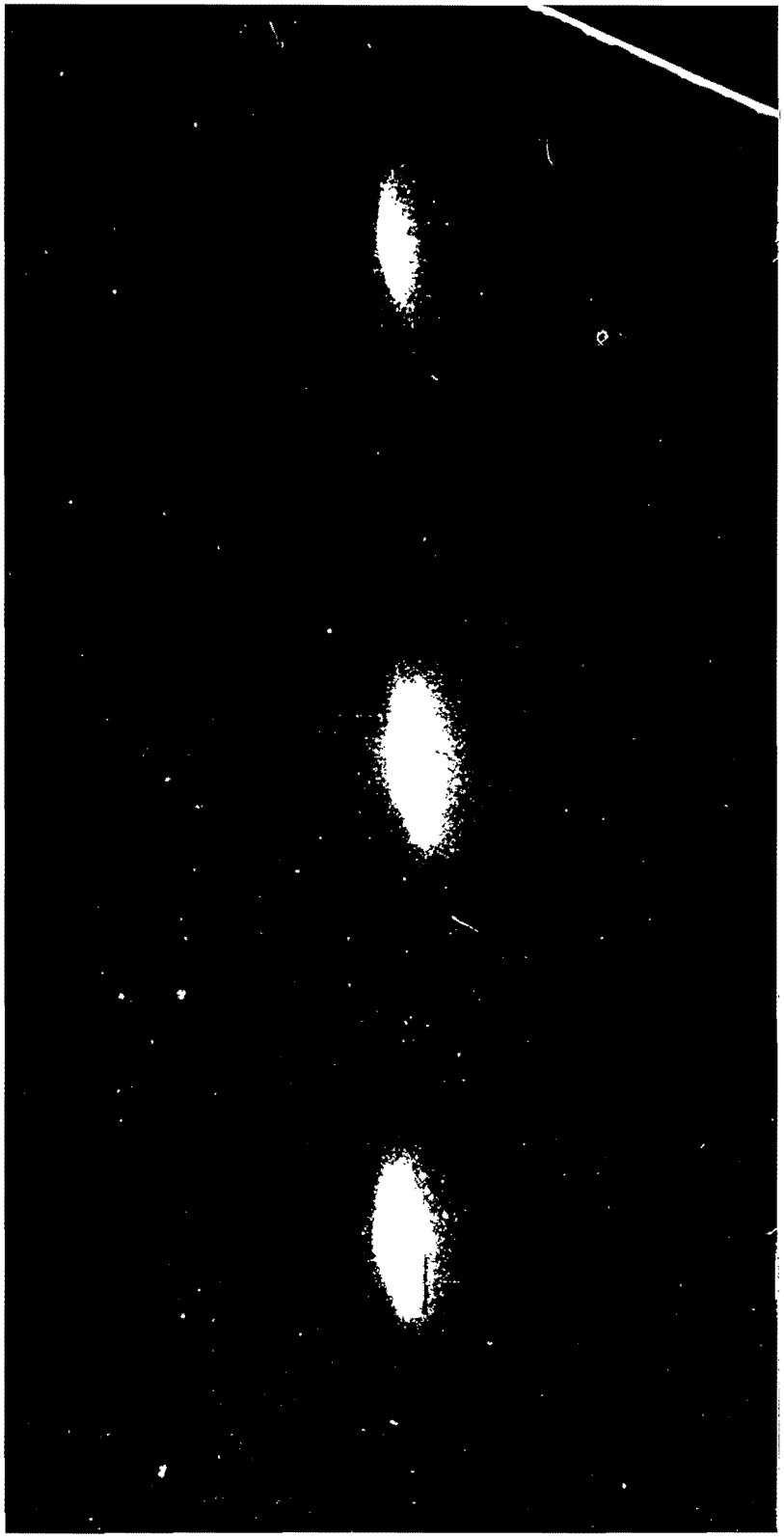
Cette étude a montré les possibilités que nous avions pour réaliser des réflecteurs monochromateurs dans le domaine de l'extrême U.V. L'étape suivante consiste à réaliser des optiques X à la demande des utilisateurs.

5 - Images d'un plasma créé par laser :

Les trois images de la photo. 3 ont été obtenues par R. BENATTAR à Livermore. Le laser utilisé pour créer le plasma émet la longueur d'onde de 0,53 µm, ses impulsions produisent un éclairement de 7.10^{14} W/cm^2 d'une durée de 1ns. La cible est en aluminium. Le dispositif expérimental est basé sur le même principe que celui de la fig. 59 mais il permet de photographier simultanément les images du plasma pour les trois longueurs d'onde ; la chambre noire est divisée en trois parties, chaque partie étant équipée d'une multicouche optimisée pour l'une des longueurs d'onde. La photo. 3 a un grandissement de 30 , la géométrie du plasma est visible sur les trois images. On remarque que la cliché correspondant à λ = 13 nm (photo 3-a) est légèrement moins intense que les deux autres : cela provient du fait que la réflectivité de la multicouche optimisée pour cette longueur d'onde est plus faible que celle des deux autres empilements et que le plasma émet principalement à 15,5 nm, longueur d'onde correspondant aux ions Al^{10+}. Il n'y a pas de différence visible entre les clichés 3-b et 3-c correspondant respectivement à 18,7 nm et 15,5 nm. L'interprétation détaillée de ces observations est en cours ; d 'ores et déjà on peut considérer que cette photographie constitue un résultat positif pour le diagnostic des plasmas denses.

Dans le but d'obtenir des images avec une meilleure résolution, nous nous intéressons à la réalisation d'un microscope de SCHWARZSCHILD. Le chapitre suivant expose l'étude préliminaire à la réalisation d'un tel instrument pour 121,6 nm de longueur d'onde.

Si (13nm)



Mg (18,7nm)

Al (15,5nm)

PHOTO. 3

CHAPITRE VII

ÉTUDE PRÉLIMINAIRE À LA RÉALISATION D'UN MICROSCOPE DE SCHWARZSCHILD (λ_U = 121,6 NM).

VII - ETUDE PRELIMINAIRE A LA REALISATION D'UN MICROSCOPE DE SCHWARZSCHILD (λ_u = 121, 6 nm) :

Les progrès récents des multicouches nous permettent d'obtenir des réflectivités de l'ordre de 10 % en incidence normale dans le domaine des X mous. On peut donc réaliser des optiques à miroirs sphériques qui travaillent en incidence quasi-normale et qui permettent des ouvertures plus grandes que les optiques à incidence rasante. Les surfaces sphériques peuvent être fabriquées plus facilement et plus précisément que les surfaces hyperboliques, paraboliques ou elliptiques utilisées pour les optiques fonctionnant en incidence rasante.

En vue de réaliser l'image d'un plasma lors de la fusion laser, nous envisageons la fabrication d'un microscope de SCHWARZSCHILD pour λ = 121,6 nm.

1 - Le microscope de SCHWARZSCHILD :

Les objectifs de SCHWARZSCHILD sont utilisés depuis 40 ans en microscopie de l'infrarouge et de l'ultraviolet.Des microscopes de SCHWARZSCHILD pour le domaine des X mous utilisant des multicouches sont en cours de réalisation aux U.S.A. ; R.P. HAELBICH (42) et E. SPILLER (43) construisent respectivement de telles optiques pour λ = 20 nm et λ = 6,8 nm.

Le schéma de principe de l'objectif de SCHWARZSCHILD que nous désirons fabriquer est représenté sur la fig. 73. Cet objectif se compose de deux miroirs sphériques et concentriques : l'un est concave et l'autre convexe.

Cette optique peut également être utilisée en réducteur dans un système à balayage pour former l'image d'une petite source sur un échantillon mobile examiné en transmission (44).

Les caractéristiques du microscope ont été calculées par F. BRIDOU et J.P. MARIOGE (45). La distance objet-image doit être inférieure à 20 m ; la résolution doit être de 1 à 5 µm dans un champ de 15 à 20 µm et de 10 µm dans un champ de 200 µm. Le diamètre du grand miroir est limité à 80 mm pour satisfaire aux conditions d'une évaporation uniforme dans l'enceinte à vide. Les

.../...

angles d'incidence sur le petit et le grand miroir varient respectivement de 2,15° à 2,64° et de 6,06° à 9,7° en valeurs positives et négatives.

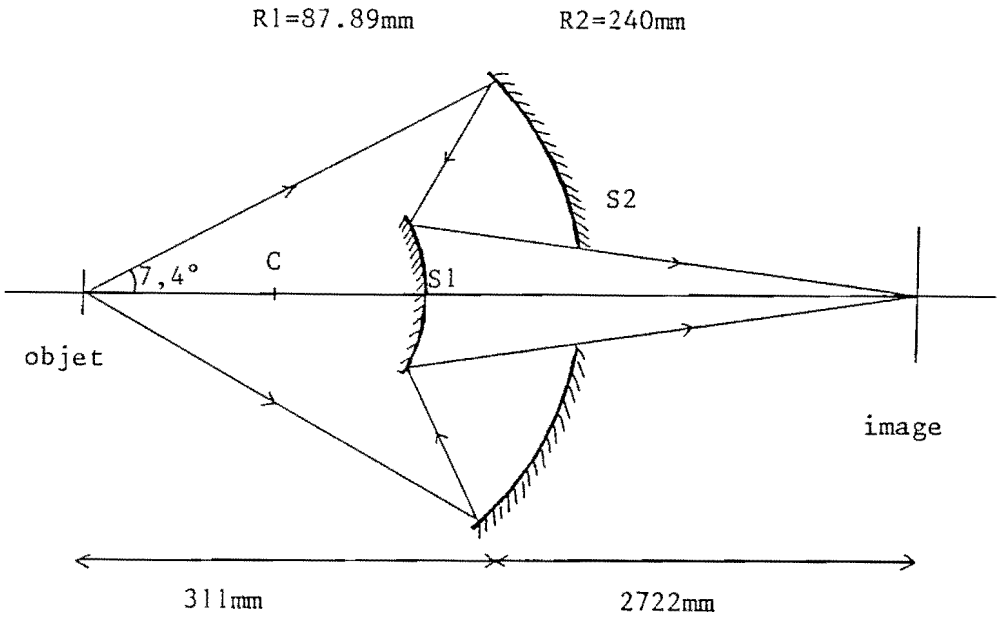


Fig. 73 : Schéma de principe de l'objectif de SCHWARSCHILD.

2 - Réflectivité théorique des multicouches pour λ_u = 121,6 nm :

2 - 1 Elément transparent des multicouches :

Dans ce domaine de longueurs d'onde, il y a deux corps transparents et suceptibles de former des couches minces par évaporation sous vide : le fluorure de lithium (LiF) et le fluorure de magnésium (MgF_2). Nous avons choisi le fluorure de magnésium dont le seuil d'absorption se trouve vers λ = 115 nm et qui présente donc l'avantage de limiter la largeur du pic de réflectivité vers les plus courtes longueurs d'onde. Les courbes de la fig. 74 représentent la réflectivité pour trois incidences différentes (30°,45°, 60°) d'une multicouche Hf/MgF_2 optimisée au deuxième ordre d'utilisation pour λ_u = 121,6 nm et θ_{inc}=45° (10 bicouches). La coupure due au seuil d'absorption est bien visible sur les trois courbes ; on remarque également que ces pics de réflectivité sont dissymétriques, la décroissance étant plus rapide du côté des grandes longueurs d'onde. La meilleure réflectivité pour λ = 121,6 nm est évidement obtenue pour θ_{inc}=45° (56,9 %) ; des écarts de + et - 15° par rapport à l'angle optimal conduisent respectivement à des réflectivités de 31,8 % et de 47,2 %

.../...

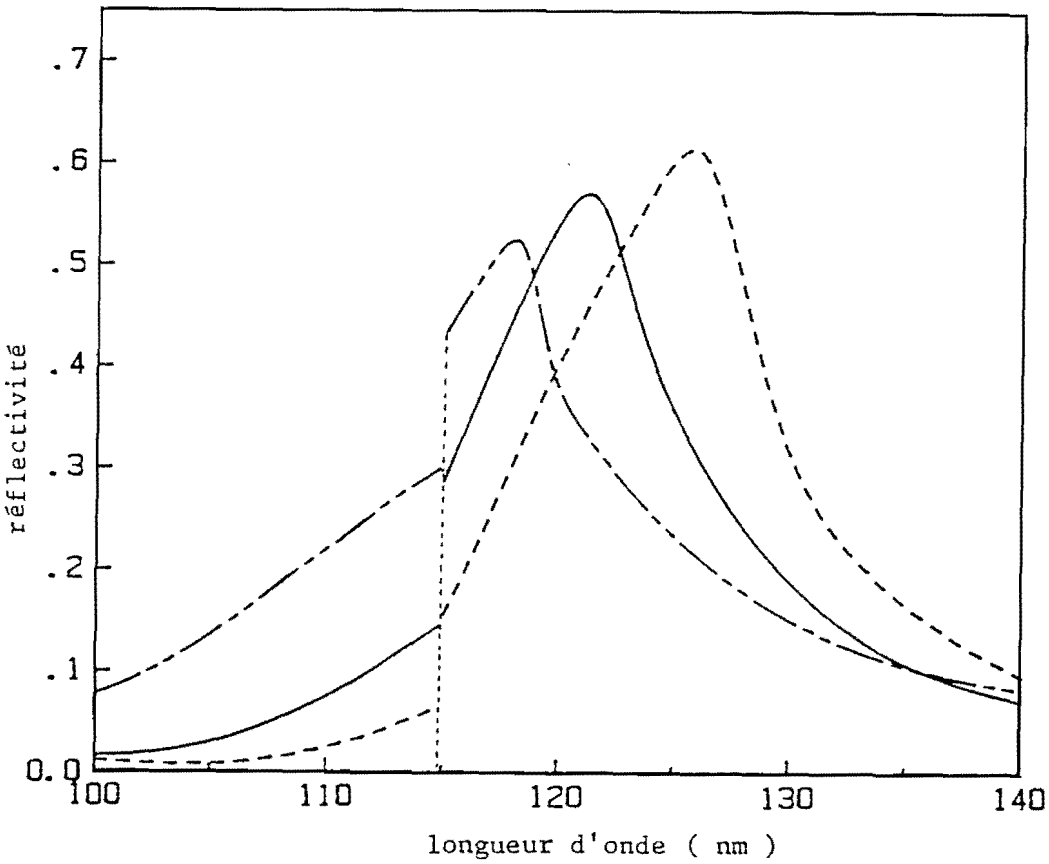


Fig. 74 : Réflectivité calculée d'une multicouche Hf/ MgF_2 optimisée pour λ_u = 121,6 nm et θ_i = 45° (10 bicouches).

—— ---- —— pour une incidence de 60°

———— " " " " 45°

---------- " " " " 30°

angle d'incidence(°)	position du max. de réfl. (nm)	max. de réfl. (%)	réfl. (%) pour λ=121,6nm	largeur du pic à mi-hauteur (nm)
30	125,7	61,2	47,2	12,1
45	121,6	56,9	56,9	11,7
60	118	52,5	31,8	8,4

.../...

2 - 2 Largeur à mi-hauteur des pics de réflectivité :

La longueur d'onde qui nous intéresse (121,6 nm) appartient à l'ultraviolet lointain ; les réflectivités que l'on obtient dans ce domaine sont beaucoup plus importantes que dans la région des X mous, on peut donc réaliser les multicouches pour le deuxième ordre à la longueur d'onde d'utilisation afin d'améliorer la largeur à mi-hauteur du pic de réflectivité. Le tableau 12 donne l'exemple de multicouches W/MgF_2 optimisées au premier, au deuxième et au troisième ordre pour λ = 121,6 nm. Pour ces trois empilements la réflectivité est de 60 % (10 bicouches) mais la largeur à mi-hauteur du pic est supérieure à 10 nm pour le premier ordre, de 6,2 nm pour le deuxième et de 4,3 nm pour le troisième.

	e_W(nm)	e_{MgF_2} (nm)	R(%)	largeur à mi-hauteur (nm)
1er ordre	5,4	36,6	60	> 10
2ème ordre	5,5	78,5	60	6,2
3ème ordre	5,6	120,4	60	4,3

TABLEAU 12 : Paramètres des empilements W/MgF_2 fonctionnant au 1er, au 2ème et au 3ème ordre (λ_u = 121,6nm, θ = 45°, 10 bicouches).

2 - 3 Influence du corps absorbant sur la réflectivité :

Nous avons calculé la réflectivité de multicouches optimisées au 2ème ordre utilisant le fluorure de magnésium comme élément transparent ; les corps absorbants pour λ = 121, 6 nm que nous avons testés sont les suivants : le nickel (Ni), le fer (Fe), le chrome (Cr), le platine (Pt) et le tungstène (W). Les résultats sont rassemblés dans le tableau 13.

.../...

Corps	e_L(nm)	e_1(nm)	Constantes optiques du corps lourd		R(%) 10 bicouches	largeur du pic à mi-hauteur (nm)
			n	k		
Nb/MgF_2	6,2	77,8	1,23	1,04	52,6	5,8
Hf/MgF_2	5,8	78,2	1,29	1,21	56,8	6,1
Ni/MgF_2	7,6	76,9	0,95	0,83	55,9	5,8
Fe/MgF_2	6,8	77,4	0,87	0,94	67,2	5
Cr/MgF_2	4,9	79	1	0,72	49,1	4
Pt/MgF_2	5,8	78,2	1,43	1,16	54,9	6
W/MgF_2	5,5	78,5	1,19	1,33	60	6,2
Mg/MgF_2	10,5	75	0,087	0,42	90,1	

TABLEAU 13 : Tableau des paramètres des multicouches optimisées au 2ème ordre pour λ_u = 121,6 nm et sous une incidence de 45°, en utilisant le Mg/F_2 comme élément transparent (n = 1,61, k = $5,044\ 10^{-6}$)

Les réflectivités varient de 52 à 90 % pour les couples de matériaux examinés, les largeurs à mi-hauteur des pics allant de 4 à 6 nm. Le couple Mg/MgF_2 donne théoriquement la meilleure réflectivité (90,1 %). La compatibilité du corps lourd avec le fluorure de magnésium (mélange, alliage...) sera déterminante pour le choix du couple de matériaux qui sera utilisé lors de la réalisation des miroirs du microscope de SCHWARZSCHILD.

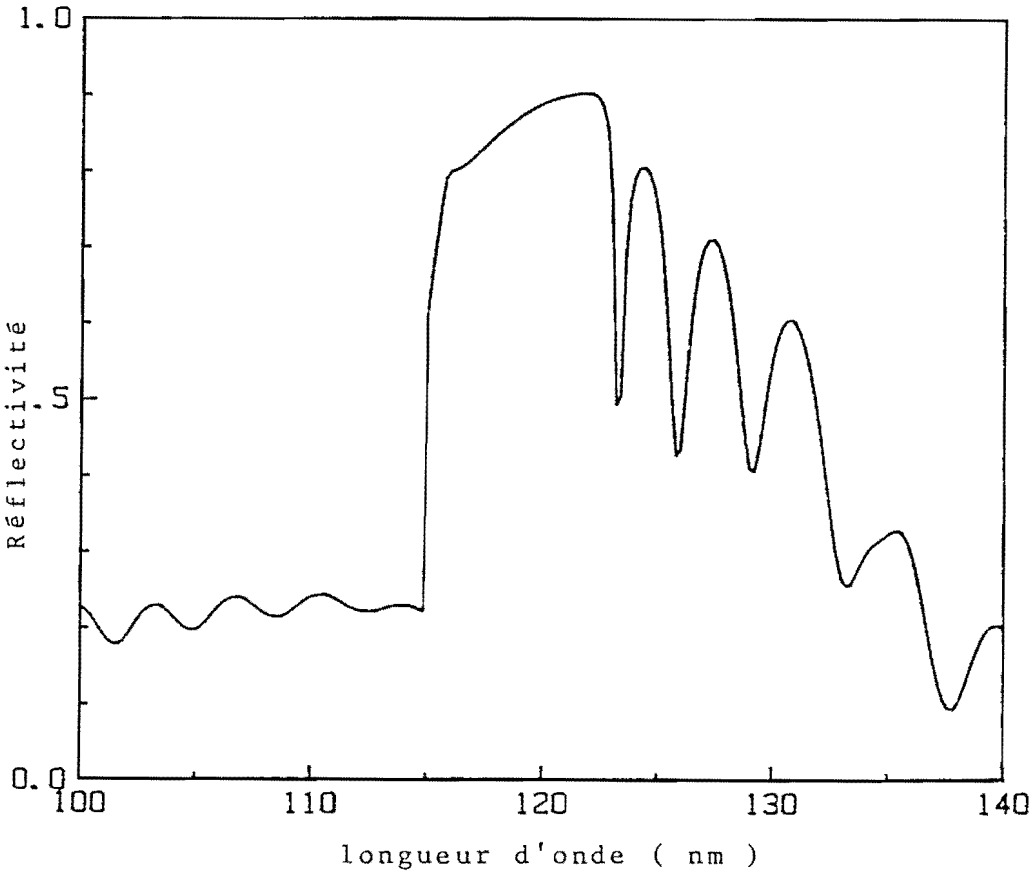


Fig. 75 : Réflectivité d'une multicouche Mg/MgF_2
(λ_u = 121,6 nm, θ = 45°, 10 bicouches)
en fonction de la longueur d'onde.

On obtient parfois des résultats inattendus comme le montre la fig. 75 représentant la courbe de réflectivité d'une multicouche Mg/MgF_2 (10 bicouches) en fonction de la longueur d'onde. Cet empilement est optimisé pour λ_u = 121,6 nm; le maximum de réflectivité est effectivement obtenu pour cette longueur d'onde mais une série de pics d'intensité importante apparaît vers les plus grandes longueurs d'onde. La partie réelle de l'indice optique du magnésium est presque nulle (0,087), les strates de magnésium n'interviennent donc pratiquement pas dans l'épaisseur optique de l'empilement. Les pics secondaires sont semblables à ceux que donnerait une couche unique de MgF_2 équivalente à l'ensemble des 10 couches élémentaires de l'empilement. Les multicouches Mg/MgF_2 ayant une excellente réflectivité quel que soit le nombre de périodes, on peut éventuellement choisir le nombre de bicouches de manière à ce que les réflectivités secondaires, dépendant principalement de l'épaisseur de fluorure de magnésium, ne gênent pas.

3 - Caractérisation des matériaux :

Le magnésium et le fluore de magnésium forment un couple de matériaux particulièrement intéressant en extrême U.V. En effet pour λ = 121,6 nm le magnésium et le fluorure de magnésium qui sont respectivement absorbant et transparent, permettent d'atteindre une excellente réflectivité. De plus, ils pourraient permettre de réaliser des multicouches pour λ = 58,4 nm, les rôles des corps absorbant et transparent étant alors inversés.

3 - 1 Le magnésium :

a) Etude par spectroscopie AUGER :

Pendant le dépôt de magnésium nous ne détectons que des traces d'oxygène. La raie AUGER LMM du magnésium est représentée sur la fig. 76. Après l'arrêt de l'évaporation l'oxygène vient se fixer sur la couche, le pic oxygène (512 eV) croît en intensité et le spectre du magnésium se déforme (fig.76).

Dans cette expérience, nous avons constaté que le faisceau d'électrons

.../...

incidents perturbait la couche. En effet une marque est visible au point d'impact du faiceau sur la surface de la couche après la sortie de l'échantillon de l'enceinte à vide.

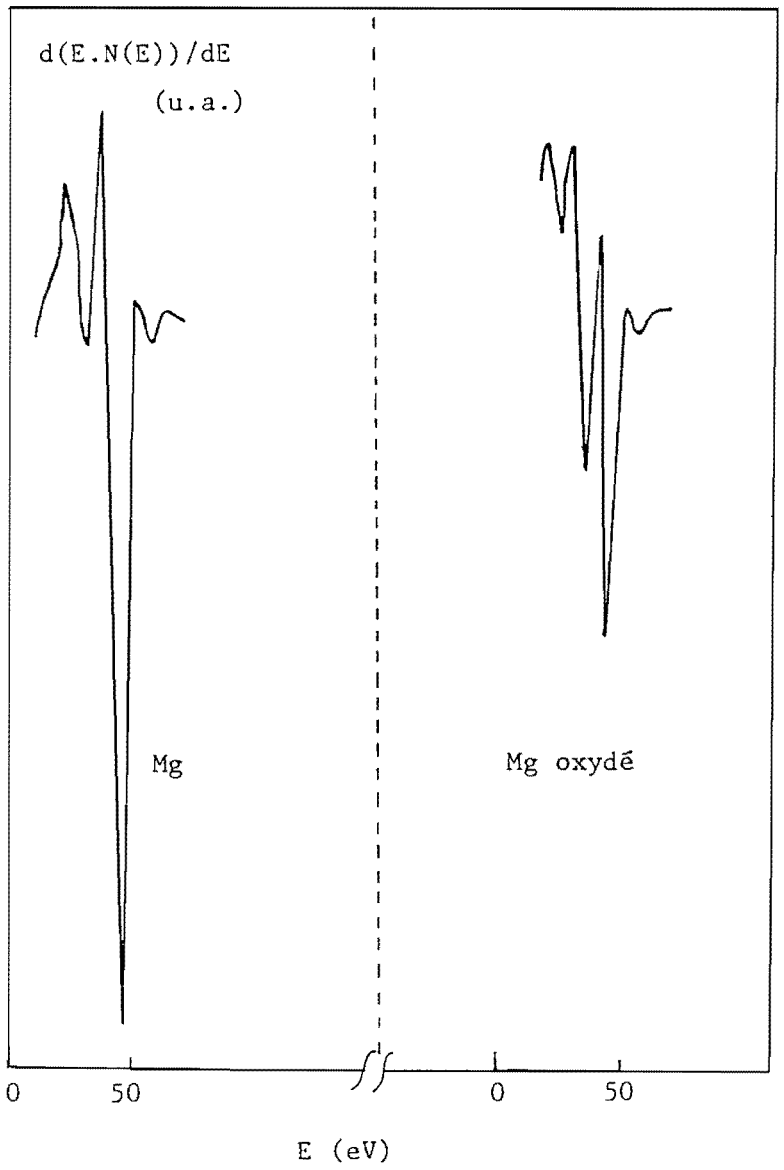


Fig. 76 : Spectre Auger du magnésium et du magnésium oxydé.

b - Etude par mesure de résistance :

b - 1 Recristallisation du magnésium :

Le magnésium en couche mince recristallise à une température inférieure à la température ambiante. Pour avoir des couches homogènes et moins

.../...

rugueuses on fait les dépôts sur des supports refroidis à -196°C (77 K) grâce à une circulation d'azote liquide dans le porte-échantillon. On ramène ensuite la couche de magnésium à la température ambiante pour la recuire. La variation de résistance pendant le recuit d'une couche de magnésium est représentée sur la fig. 77-a. La diminution de résistance entre - 180° C et - 20° C est due à la recristallisation de la couche. Si on refroidit de nouveau l'échantillon, on constate que la variation de la résistance est linéaire lors de la remontée en température (fig. 77-b), la structure de la couche n'évolue plus. On remarque que la résistance à 20°C est légèrement plus faible, ce qui indique une évolution spontanée de la couche à la température ambiante. La vitesse de la remontée en température dans ces deux expériences est de 4°/mn environ.

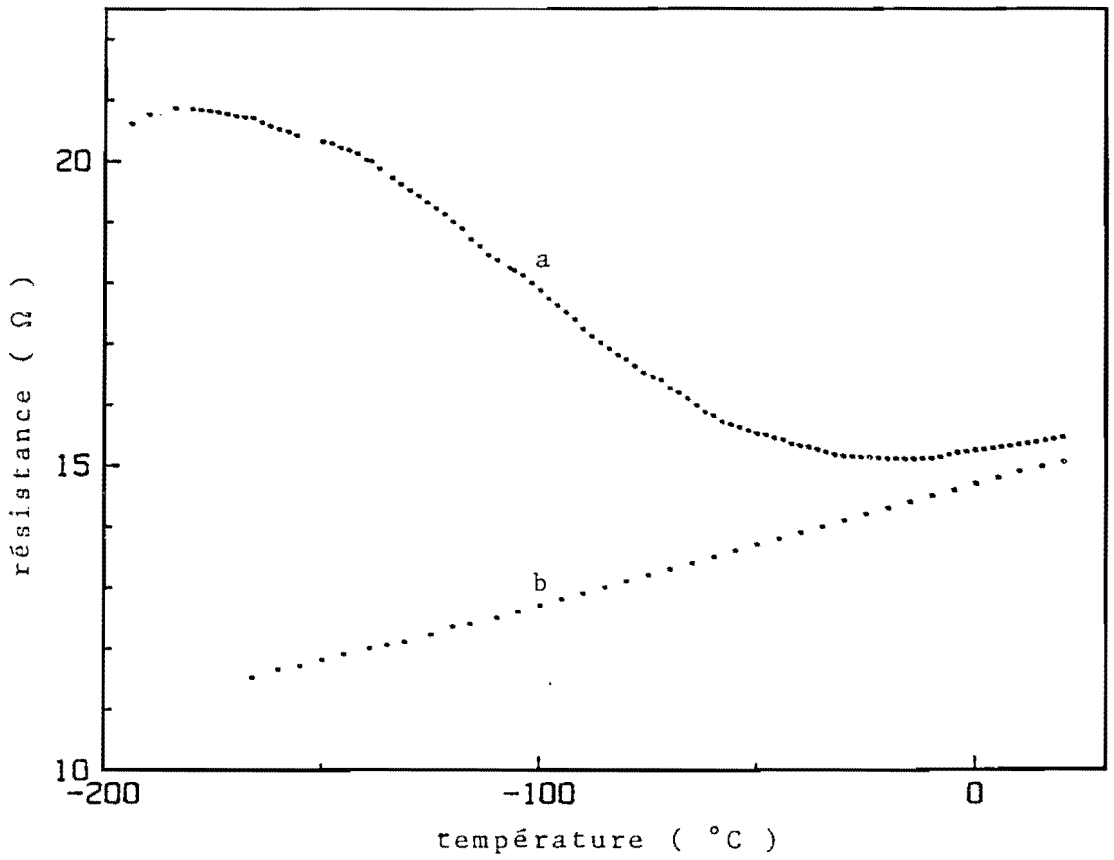


Fig. 77 : Evolution de la résistance d'une couche de magnésium en fonction de la température.
a - pendant le recuit de la couche.
b - variation réversible de la résistance de la couche après le recuit.

Le réseau du magnésium cristallisé est hexagonal. Un cliché de diffraction de rayons X réalisé dans une chambre DEBYE-SCHERRER (exposition de plusieurs heures) a montré que les couches que nous réalisons contiennent beaucoup de matériau amorphe et des cristaux de magnésium orientés suivant le plan (00.2) parallèle aux surfaces.

La mesure de résistance a également mis en évidence la détérioration des couches de magnésium pour une température supérieure à 160° C : la résistance croît alors très rapidement et non linéairement en fonction de la température : le magnésium se met en amas, par attaque thermique et diffusion superficielle.

b - 2 Oxydation du magnésium :

L'oxydation peut permettre de stabiliser une couche mince en réduisant la mobilité des atomes. Une couche de magnésium mise en atmosphère d'oxygène voit sa résistance augmenter très légèrement et le pic AUGER de l'oxygène croître, ce qui montre qu'il y a fixation d'oxygène sur la couche. La transformation complète du magnésium en oxyde (MgO) est beaucoup plus difficile à atteindre. En effet, une couche réalisée en atmosphère d'oxygène ($P_{O_2} \simeq 10^{-6}$ Torr) et avec une vitesse de dépôt du magnésium très lente, a une résistance quatorze fois supérieure à celle d'une couche de magnésium à la sortie de l'enceinte à vide. La résistance continue à croître en présence de l'oxygène atmosphérique pendant quelques jours, mais la conductibilité reste très supérieure à celle d'une couche de MgO.

3 - 2 Le fluorure de magnésium (MgF_2) :

Les couches minces de fluorure de magnésium ont été étudiées dans de nombreux laboratoires (45,46,47). Il a été montré que la température du substrat devait dépasser 220°C pour que les dépôts de fluorure de magnésium soient bien cristallisés. Un problème important, pour la qualité des couches est posé par l'hydratation du matériau surtout s'il est sous forme de poudre ; on retrouve de l'oxyde de magnésium (MgO) en quantité importante dans le creuset après l'évaporation.

.../...

La spectroscopie d'électrons AUGER n'est pas une méthode adaptée à l'étude des couches de fluorure de magnésium ; le spectre que l'on obtient montre bien la raie du magnésium mais la raie du fluor disparaît très rapidement, sous l'effet du faisceau d'électrons primaires qui favorise la décomposition du fluorure.

La qualité des couches minces de fluorure de magnésium dépend très fortement des conditions de préparation. Ainsi le fig. 78 représente les courbes de réflectivité en incidence rasante (λ_c = 0,154 nm) de trois couches de fluorure de magnésium réalisées dans les mêmes conditions de vide (P $\simeq 10^{-7}$ torr) mais respectivement sur support chaud (250° C, $\sim$ 5 nm/mn), sur support à la température ambiante avec une grande vitesse d'évaporation (20 nm/mn) et sur support refroidi par une circulation d'azote liquide (- 100° C, $\sim$ 5 nm/mn). Ces trois couches n'ont pas la même épaisseur et ne présentent donc pas le même système de franges. Une partie du décalage en intensité provient du règlage du goniomètre. On constate que la couche réalisée sur support froid n'est pas bonne : l'absence de franges de KIESSIG et la décroissance rapide de l'intensité réfléchie indiquent une forte rugosité, et l'indice calculé à partir de la limite de réflexion totale ($\delta = 13\ 10^{-6}$) n'est pas celui du fluorure de magnésium ($\delta = 9{,}8\ 10^{-6}$). De plus une modulation visible sur la courbe montre qu'il y a eu formation d'une couche superficielle après la sortie de l'enceinte à vide. Dans le cas des deux autres couches, la limite de réflexion totale donne l'indice correct du fluorure de magnésium et la rugosité ne fait pas disparaître le système de franges comme dans le cas du dépôt sur support froid. On observe une amélioration importante de la qualité des couches lorsque la température du substrat augmente.

Il est à noter qu'une couche de fluorure de magnésium n'ayant pas de bonnes caractéristiques (indice-rugosité) n'est pas améliorée par un recuit après le dépôt, qui conduit généralement à une augmentation de la rugosité,

.../...

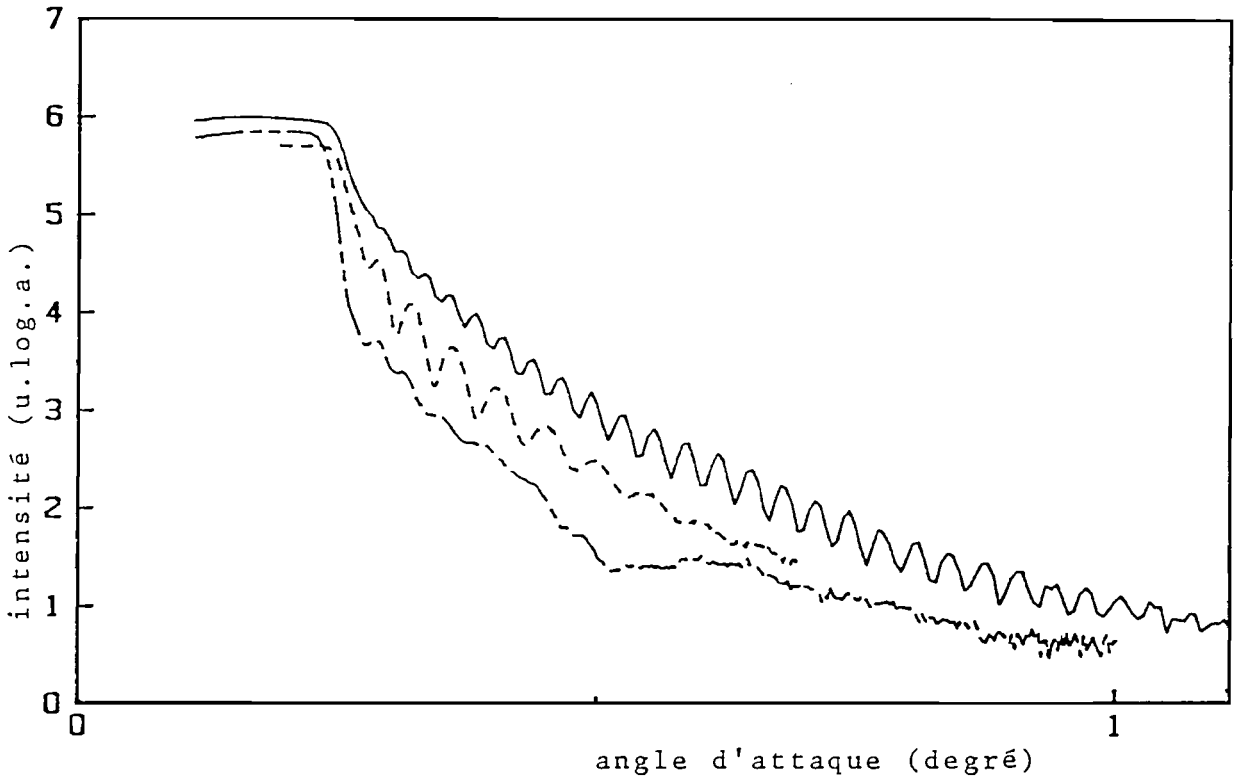


Fig 78 : Réflectivité (λ_c = 0,154 nm) de trois couches de MgF_2 en fonction de l'angle d'attaque.

	température du substrat pendant le dépôt	vitesse de dépôt (nm/mn)
————	250°C	5
- - - - - - - -	ambiante	20
—— - - ——	- 100° C	5

à un changement d'épaisseur ou à une modification de l'indice.

Le choix des conditions d'évaporation est donc très important pour fabriquer de bonnes couches de fluorure de magnésium ; nous réaliserons les couches sur support chaud (250° C) et avec une vitesse d'évaporation rapide. La condition de température impose l'utilisation d'un matériau réfractaire (Hf, Nb, Fe, W, Ni) comme élément lourd de la multicouche pour éviter la formation de couches discontinues : nous avons vu par exemple que les couches de Mg se détérioraient au-delà de 160°C.

4 - Stabilité des empilements :

Le couple de matériaux Mg/MgF_2 pose de gros problèmes de compatibilité. Le magnésium recristallise pour une température inférieure à 0°C et les couches se détériorent à partir de 160° C alors que le fluorure de magnésium doit être déposé sur un support chauffé à 250° C. La réflectomètrie de rayons X rasants (λ_c = 0,154 nm) a montré que les rugosités des interfaces sont très grandes (≃ 3 nm) ; le magnésium et le fluorure de magnésium se mélangent ; la couche de magnésium correspond en fait à une zone de fluorure de magnésium enrichie en magnésium. Nous avons donc envisagé la possibilité d'utiliser chacun de ces deux matériaux avec d'autres corps.

4 - 1 Stabilité des empilements Mg/X :

Trois corps ont été testés avec le magnésium : le bismuth, le tungstène-rhénium et le niobium.

Les empilements Mg/Bi ne sont pas stables. En effet après le dépôt d'une couche de magnésium puis d'une couche de bismuth sur un support refroidi par une circulation d'azote liquide, nous avons observé (fig. 79) lors de la remontée en température :

- une décroissance de la résistance jusqu'à la température de - 55° C qui correspond à la recristallisation de la couche de magnésium, le bismuth recristallisant pour une température beaucoup plus élevée ;

.../...

- une brusque augmentation de la résistance entre - 55°C et - 25°C , qui est due à la formation d'un alliage entre le magnésium et le bismuth ;
- une nouvelle décroissance de la résistance de - 25 à 105°C indiquant probablement un phénomène de recristallisation ;
- une croissance linéaire de la résistance à partir de 105°C signifiant que la recristallisation est terminée.

La formation d'un alliage se traduit en spectroscopie AUGER par l'apparition du magnésium à la surface de bismuth. Une étude par diffraction X a permis l'identification de l'alliage formé : Mg_3Bi_2, cristallisant dans le système hexagonal.

Une deuxième expérience a consisté à déposer une couche de magnésium puis une couche de bismuth sur un support froid, en recuisant la couche de magnésium avant de déposer le bismuth. Nous avons observé une variation de résistance continue et non linéaire en fonction de la température, lors du retour à la température ambiante après le dépôt de bismuth. Comme dans le cas de la première expérience, il y a eu mélange des spectres AUGER des deux matériaux et identification de l'alliage Mg_3Bi_2 par diffraction X. La recristallisation de la couche de magnésium avant le dépôt de bismuth n'a donc pas empêché la formation de l'alliage.

Une étude par spectroscopie d'électrons AUGER a montré que si le dépôt d'une couche de magnésium sur un film de tungstène-rhénium était stable, il n'en était pas de même pour le système inverse. Lorsqu'on dépose du tungstène-rhénium sur du magnésium, on voit réapparaître le magnésium à la surface de la couche de tungstène-rhénium au bout d'un temps plus ou moins long qui dépend des conditions d'évaporation. Ainsi l'oxydation de la couche de magnésium et le dépôt sur support froid ralentissent la diffusion du magnésium dans le tungstène-rhénium mais ne l'empêchent pas.

La fig. 80 représente la courbe de réflectivité d'une multicouche Mg/Hf (4,5 bicouches) déposée sur un support refroidi à - 100°C. La courbe de réflectivité de cet empilement réalisé au deuxième ordre avec la raie K_α du bore (λ_c = 6,78 nm)

.../...

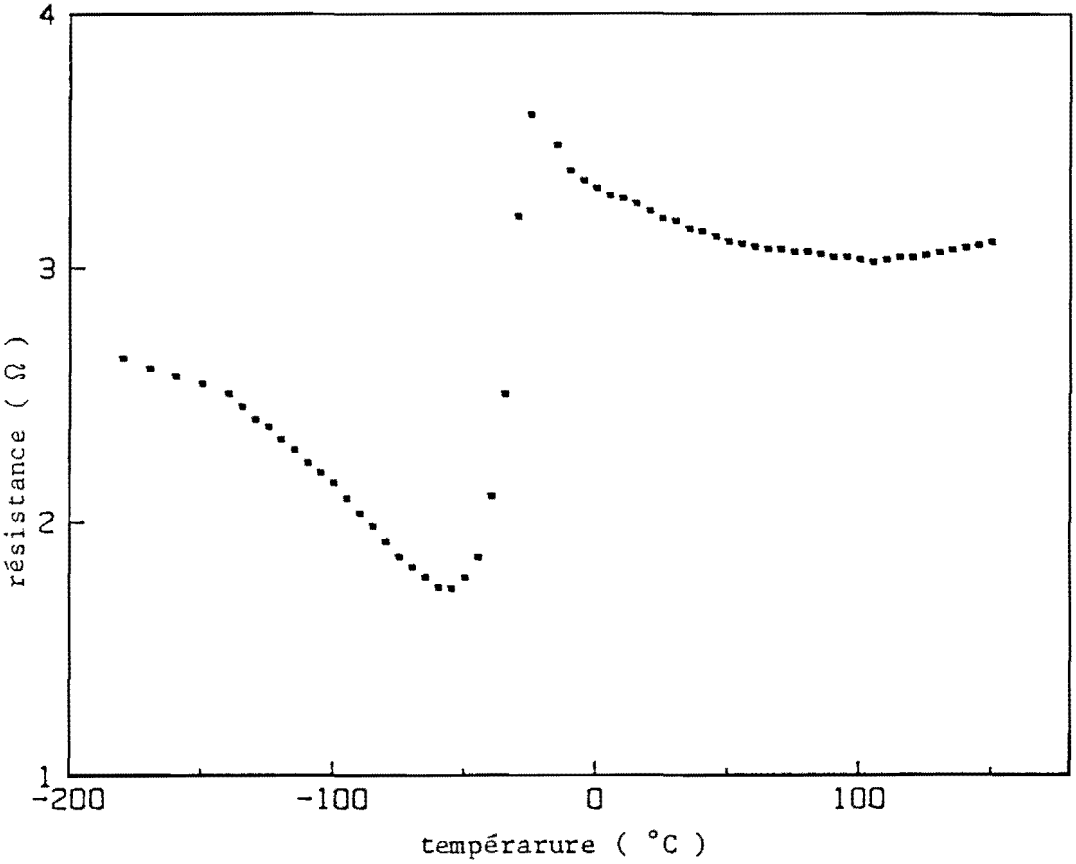


Fig. 79 : recuit d'une bicouche Mg/Bi .

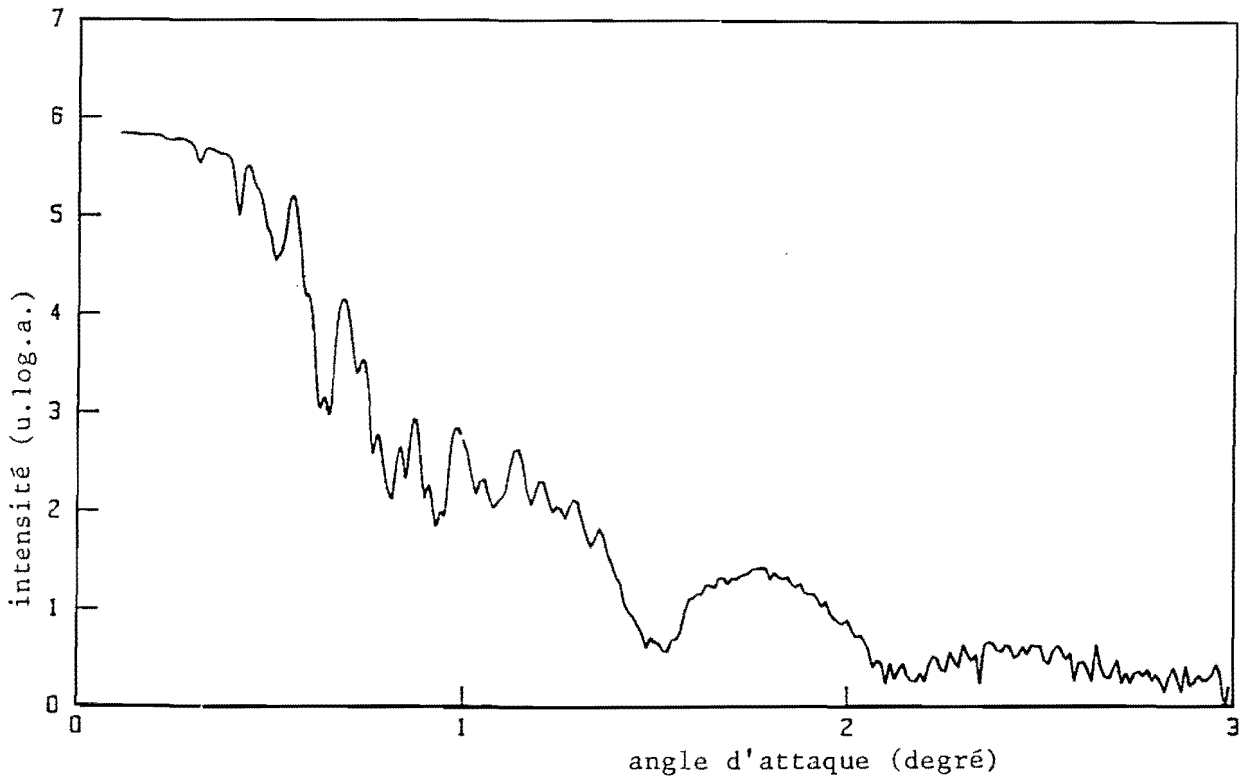


Fig. 80 : Réflectivité (λ_c = 0,154 nm) d'une multicouche Mg/Hf en incidence très rasante.

et de période approximative 22 nm, présente une série de pics montrant qu'il existe une structure dont la détermination nécessiterait une étude approfondie de la courbe.

Il semble donc que parmi les matériaux testés, la hafnium serait le plus apte à la réalisation d'empilements avec le magnésium. Une étude plus approfondie devra être faite pour déterminer les meilleures conditions de fabrication.

4 - 2 Stabilité des empilements MgF_2/X :

Afin d'obtenir de bonnes couches de MgF_2 nous réalisons les multicouches MgF_2/X sur des supports chauffés à 250° C. Nous avons réalisé deux types d'empilements : MgF_2/Hf et MgF2/Cr.

La fig. 81 représente la courbe de réflectivité (λ_c=0,154 nm)d'un empilement MgF_2/Hf (4,5 bicouches) réalisé au deuxième ordre avec la raie K_α du bore (6,78 nm). Les pics visibles sur la courbe indiquent que l'empilement est structuré ; cependant la période est très grande par rapport à celle que nous avons habituellement (28 nm très approximativement) et les pics étant très resserrés, nous ne pouvons pas juger immédiatement de la valeur de cette multicouche. Nous avons donc fabriqué la multicouche MgF_2/Cr dont la courbe de réflectivité pour λ_c = 0,154 nm est donnée par la fig. 82, avec une période plus petite : 12,8 nm. Cet empilement comporte 3,5 bicouches ; il a été réalisé en contrôlant les épaisseurs avec une microbalance à quartz, l'épaisseur de chrome étant environ le dizième de la valeur de la période. La courbe de la fig. 82 montre 3 pics de BRAGG et 2 pics secondaires entre les pics principaux, la multicouche contenant 4 couches réflectrices en chrome. Le contraste des pics s'atténue très vite lorsque l'angle d'attaque augmente ce qui indique une médiocre qualité des interfaces.

.../...

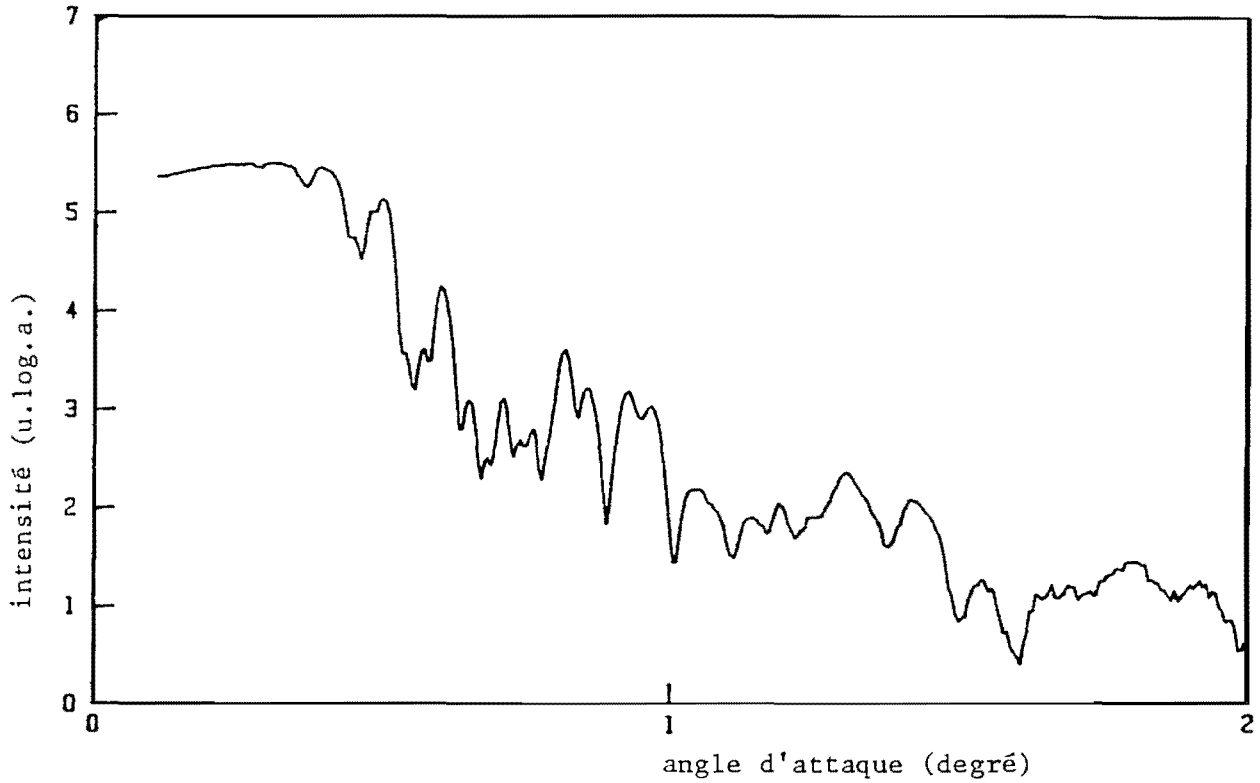


Fig. 81 : Réflectivité (λ_c = 0,154 nm)d'une multicouche MgF2/Hf en incidence très rasante (4,5 bicouches).

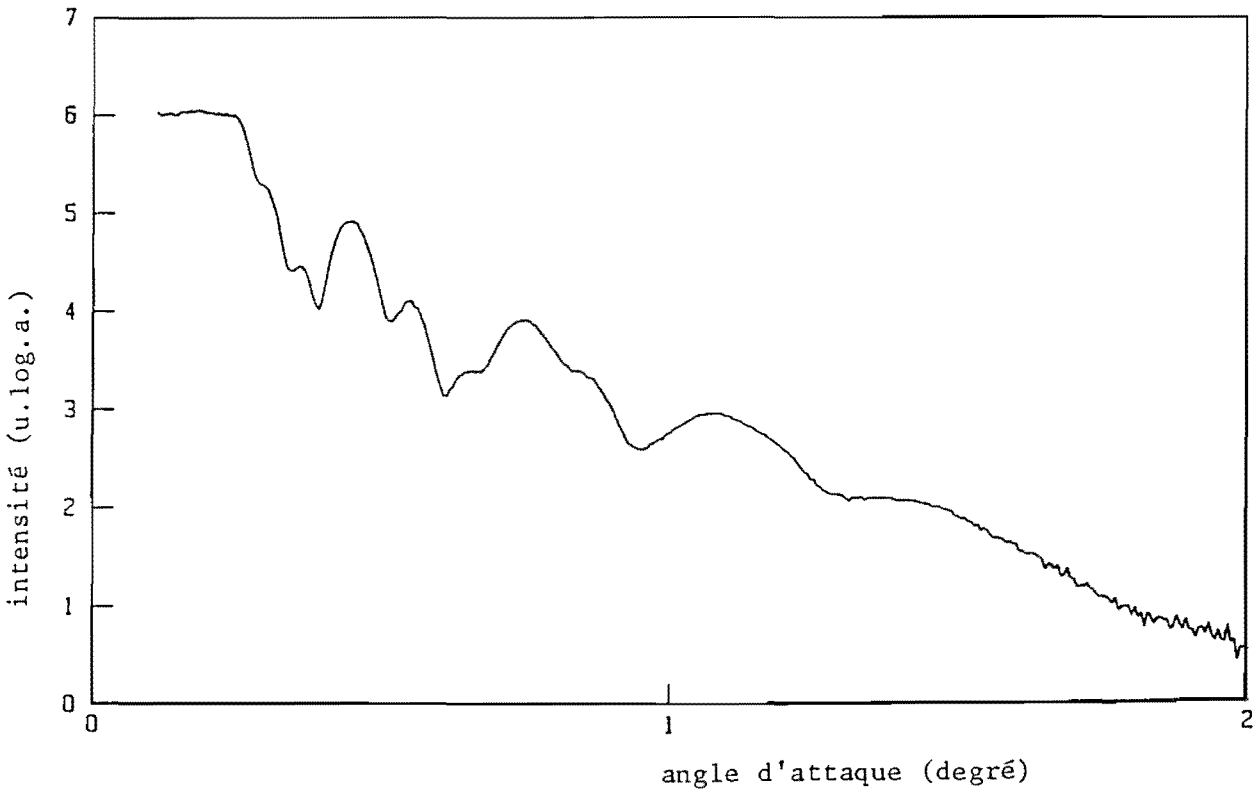


Fig. 82 : Réflectivité (λ_c = 0,154 nm) d'une multicouche MgF2/Cr en incidence très rasante (3,5 bicouches).

Ce travail n'est que l'amorce d'une étude ayant pour but la réalisation d'un microscope de SCHWARZSCHILD utilisé à la longueur d'onde de 121,6 nm. La caractérisation des couples de matériaux doit se poursuivre afin de déterminer le corps le plus compatible avec le fluorure de magnésium. La variation de l'angle d'incidence par rapport à la normale sur les miroirs du microscope (9,7°) étant plus grande que dans le cas du télescope (4°), il faudra réaliser les multicouches avec un gradient d'épaisseur latéral afin de compenser la variation de l'angle ; dans le cas de surfaces de révolution, on pourra utiliser la même technique que pour l'asphérisation des miroirs du télescope . Compte-tenu de leur intérêt pour l'imagerie des plasmas, la mise au point des différents procédés de réalisation d'optique de SCHWARZSCHILD en extrême U.V. a fait l'objet d'une demande de contrat en collaboration avec les laboratoires P.M.I[*] (Palaiseau), P.G.P.[*] (Orsay) et LURE[*]. L'objectif final est de réaliser plusieurs microscopes semblables, revêtus de multicouches accordées pour des longueurs d'onde de plus en plus courtes (121,6 nm ; 30 nm ; 15 nm) afin d'évaluer leurs performances dans l'état actuel des techniques de surfaçage des supports et de dépôt des multicouches. On s'attachera notamment à étudier l'effet des rugosités et des défauts de forme sur la qualité des images fournies par ces optiques.

[*] P.M.I. : Physique des Milieux Ionisés.

P.G.P. : Physique des Gaz et des Plasmas.

LURE : Lab. pour l'Utilisation de Rayonnement Electromagnétique.

CONCLUSION

C O N C L U S I O N

L'objectif initial était d'expérimenter de nouveaux couples de matériaux susceptibles de servir à fabriquer des empilements monochromateurs-réflecteurs en extrême UV (10 nm $\leq \lambda \leq$ 125 nm). Nous donnons ci-dessous les principaux résultats de notre travail :

1 - CHOIX DES COUPLES en fonction des constantes optiques et de la possibilité d'obtenir des couches minces par évaporation sous vide des matériaux :

Longueur d'onde (nm)	Couples de matériaux (¤)
13	Nb/B , Hf/B, WRe/B (7,3 %)
15,5	Nb/Si, Hf/Si, WRe/Si (19 %)
18,7	Nb/Si, Hf/Si, WRe/Si (24,2 %)
30,4	Nb/Si (26,5 %), Hf/Si, WRe/Si (31 %)
58,4	MgF_2/Mg,Bi/Mg
121,6	Mg/MgF_2 (90 %), Cr/MgF_2 (49 %), Fe/MgF_2 (67 %), Nb/MgF_2 (52,6 %), Hf/MgF_2 (56,8 %), W/MgF_2 (60 %)

¤ Les réflectivités données dans ce tableau sont calculées pour 10 bicouches et l'incidence normale.

.../...

2 - CARACTERISATION DES COUCHES ET DES EMPILEMENTS :

2 - 1 Sous vide, pendant et après le dépôt :

a) Spectroscopie AUGER :

- Contamination des matériaux : la spectroscopie AUGER a mis en évidence la contamination de la plupart des couches métalliques par l'oxygène dans l'enceinte ultra-vide, l'oxydation ayant lieu soit lors du dépôt (ex : WRe → $(WRe)_3O$) soit après le dépôt par formation d'une couche superficielle d'oxyde (ex : Si).
- Stabilité des empilements ultra-minces : la spectroscopie AUGER a montré la stabilité à la température ambiante des deux couples de matériaux que nous avons principalement utilisés (tungstène-rhénium/silicium, niobium/silicium) ; après dépôt d'une couche mince de l'un des matériaux il n'y a pas réapparition des raies AUGER de l'autre matériau, servant de substrat, dans le spectre AUGER de la surface.

b) Résistance électrique :

- Evolution de la structure des couches métalliques par traitement thermique : la mesure de résistance électrique a mis en évidence l'incompatibilité du couple magnésium/fluorure de magnésium, les couches de magnésium recristallisant pour une température inférieure à 0°C et se détériorant à partir de 160°C alors que celles de fluorure de magnésium doivent être déposées sur un support chauffé à 250°C.
- Formation d'alliage : nous avons observé la formation de l'alliage Mg_3Bi_2 (identifié par diffraction X) entre - 55°C et - 25°C , interdisant la réalisation de multicouches stables à la température ambiante avec le magnésium et le bismuth.

.../...

c) Réflectomètre X mous :

- Contrôle des épaisseurs : les évaporations se font par canon à électrons et le contrôle des épaisseurs est effectué par réflectomètrie in situ de rayons X mous (4,47 nm ou 6,78 nm). Cette méthode est très précise et présente l'avantage de compenser automatiquement les erreurs d'épaisseur lors de la réalisation d'un empilement. Notre dispositf expérimental permet de réaliser une gamme étendue de périodes et donc de fabriquer des miroirs interférentiels pour un domaine de longueurs d'onde important.
- Mesure de la rugosité superficielle en fonction de l'épaisseur : la mesure de la réflectivité en X mous pendant l'évaporation d'une couche permet de suivre continuement l'évolution de la rugosité de la surface libre. La simulation du signal de réflectivité R(e) d'une couche de bore et d'une couche de tungstène-rhénium a montré, dans les deux cas, une forte augmentation initiale suivie d'une diminution de la rugosité au début du dépôt, qui pourrait correspondre à une nucléation de petits amas sur la surface du substrat suivie de la formation d'une couche continue, puis une augmentation monotone de la rugosité approximativement proportionnelle à $\sqrt{e}$.

2 - 2 Hors de l'enceinte : Rayons X rasants

Les contrôles par réflexion de rayons X rasants (λ_c = 0,154 nm), après la fabrication, nous ont permis de caractériser des couches simples et des multicouches (période, épaisseur des couches,rugosité d'interface, densité). Nous avons vu, par exemple, que les couches épaisses de bore (200 nm) ont une rugosité relativement faible (0,8 à 1 nm). Le test à 0,154 nm a montré qu'il y a croissance de la rugosité avec le nombre de couches de l'empilement, mais que les rugosités interfaciales des empilements(WRe/Si, Nb/Si, Nb/B), dépassent rarement 1 nm.

.../...

3 - Les résultats de la caractérisation par rayons X rasants, permettent une modélisation réaliste des empilements, tenant compte des défauts (géométrie, composition). Ainsi nous avons calculé que la perte de réflectivité due aux imperfections des empilements pouvait atteindre 50 % pour certains matériaux. Ce résultat concorde avec les mesures de réflectivité en X mous effectuées par J.P. DELABOUDINIERE grâce au rayonnement synchrotron ; des multicouches ayant théoriquement une réflectivité de 20 à 30 % ($\lambda \simeq 30$ nm) ont expérimentalement une réflectivité de 10 à 15 %.

4 - REALISATIONS PRATIQUES :

4 - 1 Télescope pour $\lambda_u = 30{,}4$ nm :

Nous avons entrepris la réalisation d'un télescope pour $\lambda_u = 30{,}4$ nm en collaboration avec le L.P.S.P.(Verrière-le-Buisson). Nous avions deux problèmes à résoudre : asphériser les supports des deux miroirs du télescope puis concevoir et tester les multicouches adaptées à la longueur d'onde et aux conditions de fonctionnement réelles des miroirs. Nous avons montré que l'asphérisation pouvait être réalisée par dépôt de couches de bore à gradient latéral d'épaisseur et nous avons choisi de réaliser la multicouche avec du tungstène-rhénium et du silicium. Le premier prototype du télescope est en cours de réalisation.

4 - 2 Miroirs pour le diagnostic des plasmas :

Nous avons fabriqué des réflecteurs-monochromateurs pour le diagnostic des plasmas créés par laser. Nous avons conçu et réalisé des multicouches pour trois longueurs d'onde : 13 nm, 15,5 nm et 18,7 nm. Les premiers résultats sont positifs et cette étude va se poursuivre par la réalisation de microscopes de SCHWARZSCHILD.

5 - PERSPECTIVE :

Les multicouches pour le rayonnemnt X-UV ouvrent de nouvelles perspectives sur le plan de l'instrumentation ; c'est un domaine qui progresse très rapidement et la commercialisation de tels empilements destinés principalement à l'analyse par fluorescence X, est déjà réalisée aux Etats-Unis.

.../...

5 - 1 Autres matériaux :

Dans l'avenir, la caractérisation de nouveaux couples de matériaux (ex : molybdène/silicium) doit se poursuivre afin d'atteindre des réflectivités plus élevées.

5 - 2 Problèmes majeurs :

Des améliorations du bâti d'évaporation sont envisageables.

a) Pureté des couches :

Pour augmenter la pureté des couches, il faut améliorer la qualité du vide dans l'enceinte d'évaporation ; cette amélioration peut être obtenue grâce à l'installation de pièges à azote liquide et de dispositifs de dégazage des surfaces sous vide.

Plusieurs paramètres peuvent varier pendant la fabrication des multicouches et modifier la nature et la structure des dépôts : pression, vitesse de dépôt, température ; la régulation de la vitesse de dépôt des matériaux qui vient d'être expérimentée, permettra d'avoir une reproductibilité plus grande de la composition des couches.

b) Rugosité d'interface :

La rugosité des interfaces d'une multicouche est un paramètre très important pour la réflectivité. On peut envisager d'utiliser d'autres méthodes de dépôts ; la pulvérisation cathodique, par exemple, semble donner de très bons résultats.

Il serait intéressant d'étudier plus en détail les mécanismes de croissance des couches en fonction des conditions de dépôt (température du substrat, nature et énergie des particules incidentes ....) et notamment de comparer les états de surface de couches de matériaux respectivement amporphes et cristallisés. Dans ce dernier cas, on sait par exemple que des interfaces extrêmement lisses à l'échelle atomique sont obtenues par épitaxie à jets moléculaires

.../...

de matériaux semi-conducteurs (super-réseaux).

c) Uniformité des couches :

L'évaporation par canon à électrons est directive ; incliner et faire tourner le substrat pendant le dépôt, de manière à faire varier l'incidence du faisceau évaporant sur la surface du substrat, permettrait de réaliser des épaisseurs uniformes sur une plus grande surface et pourrait peut être également améliorer les rugosités interfaciales des empilements.

5 - 3 Réalisations pratiques envisagées :

La réalisation des systèmes optiques à forte courbure rend nécessaire le développement de dépôt de multicouches sur des supports non plans et de dépôt de multicouches à gradient latéral d'épaisseur. Ces objectifs peuvent être atteints en utilisant des caches, comme dans le cas de l'asphérisation des miroirs du télescope, lorsque le miroir possède un axe de symétrie de révolution. Dans les autres cas, il faudra, par exemple, mettre en oeuvre des techniques de dépôt dans lesquelles on pourra maîtriser la distribution spatiale du faisceau évaporé.

B I B L I O G R A P H I E

1 - E. SPILLER, Handbook on Synchrotron Radiation, Ed. E.E. Koch, North-Holland Publishing Company (Amsterdam), 1 (1983) 1092.

2 - J.H. UNDERWOOD, T.W. BARBEE, Low Energy X-Ray Diagnostics, AIP Proc. 75 (1981) 170.

3 - P.H. BERNING, Physics of thin films (Acad. Press, New York and London) 1 (1963) 69.

4 - F. ABELES, Ann. Phys. (Paris) 5 (1950) 596.

5 - B. PARDO, communication personnelle.

6 - B.L. HENKE, Low Energy X-Ray Diagnostics, AIP Proc. 75 (1981) 146.

7 - B.L. HENKE, P. LEE, T.J. TANAKA, R.L. SHIMABUKURO, B.K. FUJIKAWA, Atomic Data and Nuclear Data Tables. 27, n° 1,1982.

8 - D. NACCACHE, thèse de 3ème cycle, Université de P.et M. Curie (1983).

9 - T. MEGADEMINI, thèse de 3ème cycle, Université Paris-Sud (1984).

10 - A.V. VINOGRADOV, B.Y. ZELDOVICH, Appl. Optics 16 (1977) 89.

11 - A.V. VINOGRADOV, B.Y. ZELDOVICH, Opt. Spectrosc. 42 (1977) 404.

12 - E. SPILLER, Low Energy X-Ray Diagnostics, AIP Proc. 75 (1981) 124.

13 - CHUAN C. CHANG, Surf. Sci. 25 (1971) 53.

14 - E. BAUER, Vacuum 22 (1972) 539.

15 - H.H. MADDEN, J. Vac. Sci. Technol. 18 (1981) 677.

16 - T.W. HAAS, J.T. GRANT, G.J. DOOLEY, J. Appl. Phys. 43 (1972) 1853.

17 - J.P. BIBERIAN, G.A. SOMORJAI, Appl. Surface Sci. 2 (1979) 352.

18 - J.P. CHAUVINEAU, Thin Solid Film 109 (1983) 353.

19 - A. VAN OOSTROM, Suf. Sci. 89 (1979) 615.

20 - J.P. CHAUVINEAU, J. CORNO, D. NACCACHE, L. NEVOT, B. PARDO, L.VALIERGUE, J. Optics (Paris) 15 (1984) 265.

.../...

21 - A.N. BROERS, E. SPILLER, Scanning Electron Microscopy, SEM Inc., Ed. AMF O'HARE (Chicago), (1980) 201.

22 - Réunion du "Groupe multicouches", 26 avril 1985

23 - L. NEVOT, Acta Electronica 24 (1981/1982) 255.

24 - J. TEXEREAU, La construction du télescope d'amateur (1961), 2ème édition(Société Astronomique de France) 119.

25 - Solar and Heliospheric Observatory. "SOHO" projet de l'Agence Spatiale Européenne.

26 - J.P. CHAUVINEAU, D. DECANINI, M. MULLOT, L. VALIERGUE, Application of Thin Film Multilayered Structures to Figured X-Ray Optics, SPIE Proc. 563 (1985) 275.

27 - J.P. CHAUVINEAU, J. CORNO, D. DECANINI, L. NEVOT, B. PARDO, Application of Thin Multilayered Structures to Figured X-Ray Optics, SPIE Proc. 563 (1985) 245.

28 - J.P. DELABOUDINIERE, J.P. CHAUVINEAU, J.P. MARIOGE, Application of Thin Film Multilayered Structures to Figured X-Ray Optics, SPIE Proc. 563 (1985) 44.

29 - L. NEVOT, thèse de doctorat d'état, Université PARIS-Sud (1978).

30 - P. CROCE, L. PROD'HOMME, J. Optics (Paris) 15 (1984) 95.

31 - B.A. JOYCE, J.H. NEAVE, Surf. Sci. 27 (1971) 499.

32 - G.A. HAAS, H.F. GRAY, J. Appl. Phys. 46 (1975) 3885.

33 - N. LIESKE, R. HEZEL, Thin Solid Film 61 (1979) 197.

34 - R.P. HAELBICH, A. SEGMÜLLER, E. SPILLER, Appl. Phys. Lett. 34 (1979) 184.

35 - Handbook of thin film materials, SLOAN.

36 - K.J. RAWLINGS, B.J. HOPKINS, S.D. FOULIAS, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 18 (1980) 213.

37 - KAZUO ISHIKAWA, YASUSKI TOMIDA, J. Vac. Sci. Technol 15 (1978) 1123.

38 - A. DADAYAN, Yu. G. KRIGER, V.M. TAPILIN, V.I. SAVCHENKO, Bull. Acad. Sci. USSR, Ser. Phys. (USA) 38 (1974) 83.

39 - M. LIEHR, N. HERBOTS, J.P. DELRUE, R. CAUDANO, R.A.L. VANDEN BERGHE, R. VLAEMINCK, H. LOOS, J. Vac. Sci. Technol. 2 (1984) 288.

.../...

40 - T.W. BARBEE, Jr. S. MROWKA, M.C. HETTRICK, Appl. Opt. 24 (1985) 883.

41 - R. BENATTAR, Communication personnelle.

42 - R.P. HAELBICH, Scanned Image Microscopie (Academic Press, London) (1980) 413.

43 - I. LOVAS, W. SANTY, E. SPILLER, R. TIBBETTS, J. WILCZINSKI, High Resolution soft X-Ray Optics, SPIE Proc. 316 (1981) 90.

44 - R.P. HAELBICH, W. STAEHR, C. KUNZ, Ann. N.Y. Acad. Sci. 342 (1980) 148.

45 - F. BRIDOU, J.P. MARIOGE, J. Optics (Paris) 15 (1984) 270.

46 - A. BARRIERE, Y. DANTO, J. SALARDENNE, Thin Solid Film 12 (1972) S39.

47 - A. BARRIERE, Y. DANTO, J. SALARDENNE, Thin Solid Films 18 (1973) 201.

48 - R. ABERMANN, H.P. MARTINZ, Thin Solid Film 115 (1984) 185.

49 - A. ROSENBLUTH, Thèse Université de Rochester (U.S.A), 1982.

DECANINI Dominique

Conception et réalisation de miroirs monochromateurs-réflecteurs pour le rayonnement X-UV.

Résumé : Des empilements périodiques de couches minces alternées respectivement absorbantes et transparentes pour le rayonnement X-UV permettent de réaliser, pour ce domaine de longueurs d'onde (10 nm $\lesssim \lambda \lesssim$ 125 nm), des miroirs monochromateurs-réflecteurs. De telles multicouches rendent possible la réalisation d'optiques X-UV travaillant en réflection et en incidence quasi-normale. Après une étude des matériaux par spectroscopie AUGER et par mesure de résistance pour évaluer la compatibilité des couples de matériaux en couches très minces, les miroirs interférentiels sont réalisés par évaporation sous vide en contrôlant les épaisseurs par réflectométrie de rayons X mous (λ_c = 4,47 nm ou 6,78 nm) pendant le dépôt, puis caractérisés (période, densité, rugosité) par réflection de rayons X (λ_c = 0,154 nm) rasants. Les miroirs à multicouches réalisés au cours de ce travail sont destinés à l'astrophysique (télescope pour λ_u = 30,4 nm) et au diagnostic des plasmas créés par laser (λ_u = 13 nm, 15,5 nm, 18,7 nm et 121,6 nm).

Mots clés : couches minces, multicouches, optique X-UV, réflectométrie X mous, réflexion X rasants, spectroscopie AUGER.