

## Moyens de simulation et de caractérisation des dépôts

Cette partie est consacrée à la simulation et à la caractérisation des systèmes multicouches. La simulation nous permet de définir la structure théorique de l'empilement multicouche et de prédire ses propriétés optiques (réflectivité). L'étude des systèmes multicouches par réflectométrie des rayons X en incidence rasante permet d'une part de vérifier que les épaisseurs déposées sont en bon accord avec les prédictions obtenues par simulation, et d'autre part d'estimer les imperfections de l'empilement afin de prédire de manière plus rigoureuse ses performances finales. Cependant, la mesure expérimentale de la réflectivité à l'énergie d'utilisation reste une méthode de caractérisation indispensable pour déterminer les performances optiques des multicouches.

### 2.1. Simulation

La simulation nous permet de définir la structure théorique de l'empilement multicouche la plus adéquate pour un angle et une énergie donnés, et de modéliser ses performances finales en termes de réflectivité. Elle nous permet aussi d'ajuster les courbes expérimentales de réflectométrie des rayons X en incidence rasante et de réflectivité XUV à des courbes théoriques, afin de déduire différents paramètres structuraux des multicouches étudiées.

Le logiciel de simulation utilisé s'appelle IMD, et a été développé par David L. Windt [4]. Ce logiciel contient une base de données de constantes optiques théoriques et expérimentales pour plus de 150 matériaux, couvrant le spectre électromagnétique des rayons X à l'infrarouge lointain. Les différents paramètres ajustables utilisés pour définir la structure de la multicouche sont les suivants : le couple de matériaux, le nombre  $N$  de périodes, la période  $d$  de la multicouche, la proportion  $\Gamma$  du matériau 1 dans la période (épaisseur du 1<sup>er</sup> matériau divisé par la période), le matériau constituant le substrat, les rugosités interfaciales ( $\sigma_{RX}$ ). Tous ces paramètres sont accessibles dans la fenêtre structure de l'interface utilisateurs, représentée en figure 9.

La réflectivité est calculée par une méthode récurrente, considérant des couches homogènes avec des interfaces abruptes. L'amplitude totale réfléchiée par une couche située au dessus d'une autre structure est déterminée par l'amplitude réfléchiée à l'interface entre ces deux couches et par l'amplitude réfléchiée de la structure sous-jacente. Cette dernière peut être calculée de façon récurrente en la subdivisant en une autre couche située au dessus de la structure restante, jusqu'à ce qu'il ne reste qu'une couche au dessus du substrat. Le calcul de la formule récurrente, à partir des coefficients de réflexion de Fresnel, est décrit dans les références 3, 4 et 5.

Toutefois, la réflectivité des miroirs multicouches est très sensible aux imperfections des interfaces induite par la rugosité des couches ou l'interdiffusion des matériaux. Une manière de tenir compte de ces imperfections a été proposé par L. Nevot et al. [6] : pour une interface entre deux milieux homogènes, où la répartition de la hauteur est distribuée aléatoirement, la variation d'indice en profondeur peut être représentée par une fonction erreur [3]. Ils ont démontré que l'effet de cette variation d'indice était équivalent à multiplier la réflectivité théorique d'une interface par un facteur correctif exponentiel, équivalent au modèle de Debye-Waller, généralement utilisé pour traiter l'agitation thermique dans les cristaux.

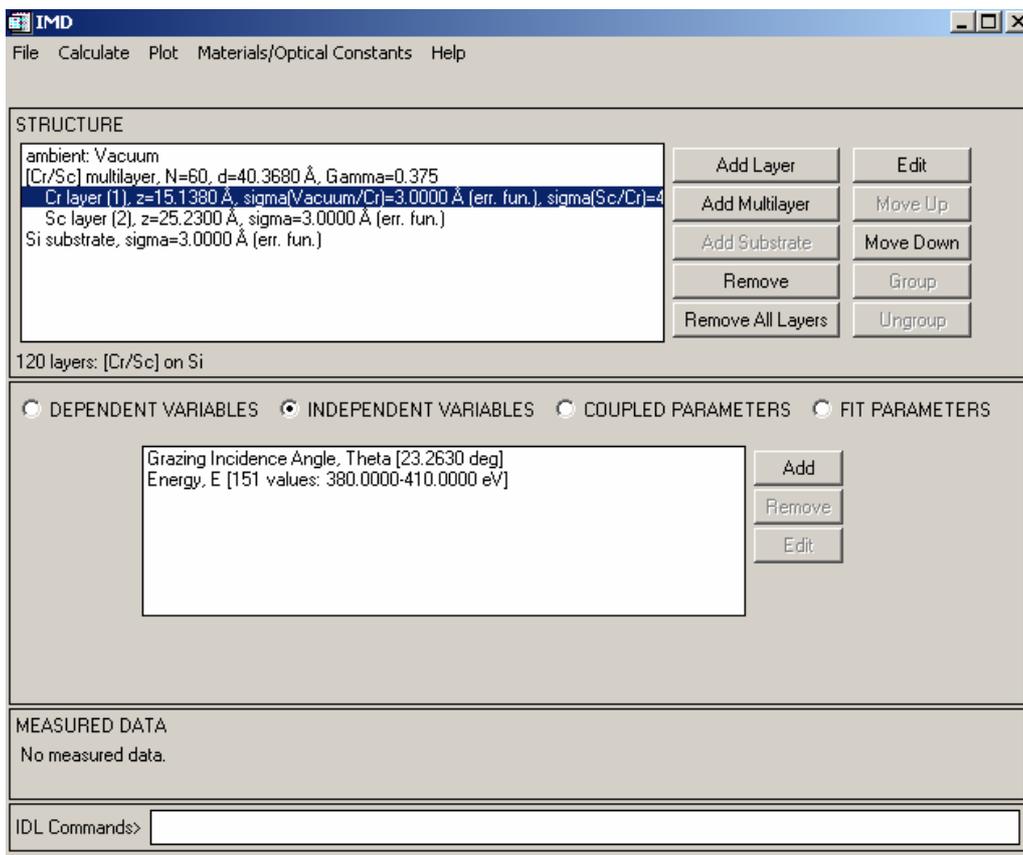


Figure 9 : Interface utilisateur du programme de simulation IMD.

Une fois que la structure de la multicouche est définie dans le programme de simulation, il suffit de définir les angles et énergies (ou longueurs d'onde) pour lesquels la multicouche est destinée à réfléchir, et de lancer le calcul. Un exemple de résultat est représenté en figure 10. Il est possible de faire varier chacun des paramètres définissant la structure de la multicouche, afin d'ajuster la position du pic de réflectivité à l'angle ou l'énergie souhaitée. De plus, la valeur de réflectivité d'une multicouche dépend de l'état de polarisation du rayonnement incident. Dans le logiciel IMD, la polarisation du rayonnement incident est définie de la manière suivante :  $f = -1$  pour une

polarisation p,  $f = 0$  pour une lumière non polarisée, et  $f = +1$  pour une polarisation s. Ainsi,  $f = 0,8$  correspond à une polarisation de 90% s.

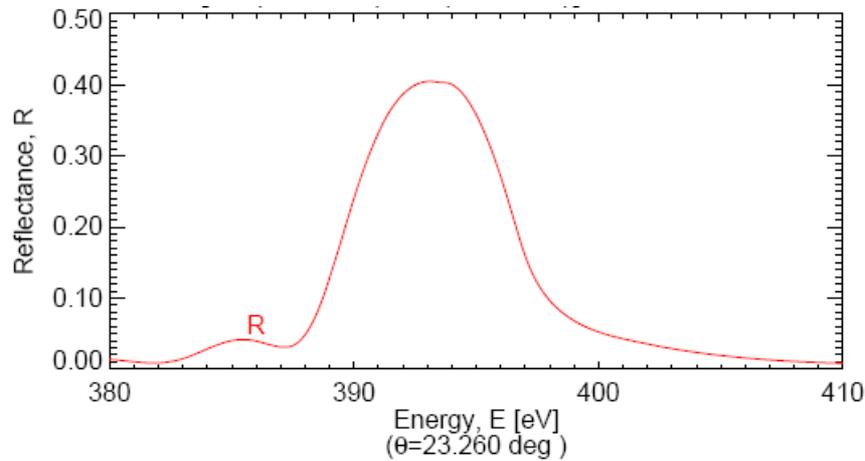


Figure 10 : Exemple de courbe de réflectivité obtenue par simulation IMD, pour une multicouche Cr/Sc de période  $d = 4,03$  nm, et un nombre de périodes  $N$  de 60.

Le logiciel IMD permet également de lire un fichier de données expérimentales afin d'ajuster les courbes de réflectivité expérimentales et calculées entre elles et de déduire différents paramètres structuraux de la multicouche étudiée. De tels ajustements ont été effectués au cours de ma thèse et seront présentés dans les parties concernées.

## 2.2. Réflectométrie des rayons X en incidence rasante

La réflectométrie des rayons X en incidence rasante permet de caractériser les couches minces ainsi que les miroirs multicouches. La période de l'empilement peut être calculée facilement à partir des courbes de réflectivité expérimentales mais des informations plus complètes sur les paramètres structuraux de la multicouche peuvent également être obtenues, à l'aide de la simulation et de l'ajustement des courbes.

Deux réflectomètres en incidence rasante ont été mis à ma disposition, l'un localisé au LCFIO (GRX1), l'autre chez Xenocs (Seifert). Leurs caractéristiques respectives seront décrites dans un premier temps, puis nous détaillerons ensuite l'analyse d'une courbe de réflectivité.

### 2.2.1 GRX1 : réflectomètre en incidence rasante du LCFIO

La figure 11 représente le schéma de principe du réflectomètre en incidence rasante du LCFIO [6].

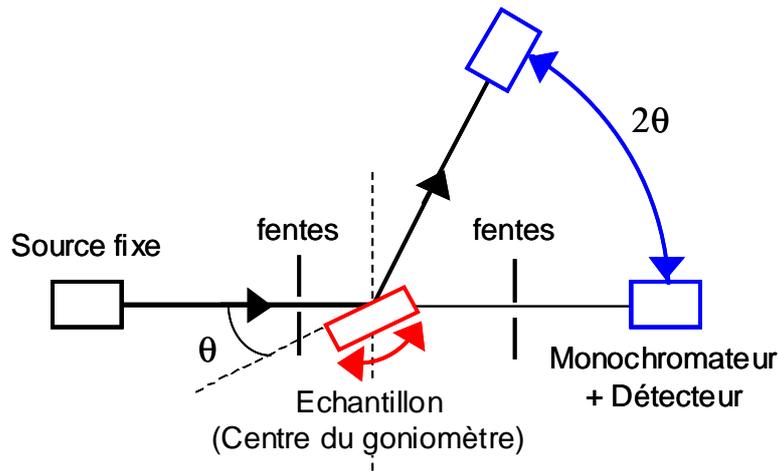


Figure 11 : Schéma de principe du réflectomètre X en incidence rasante du LCFIO (vue de dessus).

GRX1 est composé d'une source (tube à rayons X), d'un générateur, d'un goniomètre  $\theta/2\theta$ , d'un détecteur, d'un système de fentes et d'un porte échantillon. Pendant la mesure, la source est fixe et l'échantillon et le détecteur sont mobiles. Les axes de rotation de l'échantillon et du détecteur sont confondus. Le mouvement de l'échantillon et du détecteur sont couplés en  $\theta/2\theta$ .

La source est une anticathode de cuivre (de foyer linéaire  $0,1 \times 10$  mm) alimentée par un générateur haute tension délivrant une tension de 40 kV et une intensité de 25 mA.

Le détecteur est un compteur proportionnel à gaz (Argon/Méthane), équipé de filtres positionnés sur une roue, permettant de rester dans la région linéaire du compteur et d'avoir une dynamique de 6 ordres de grandeur. Le monochromateur en carbone graphite, placé après l'échantillon juste devant le détecteur, permet de sélectionner la raie  $K_{\alpha}$  ( $\lambda = 0,154$  nm,  $E = 8050,6$  eV) dans le spectre émis.

L'échantillon est maintenu par aspiration sur le porte-échantillon. L'alignement de la surface de l'échantillon avec le faisceau et le centre du goniomètre est réalisé à l'aide d'une lunette auto-collimatrice pré-réglée lors de l'alignement du système. La précision du réglage est de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$ . La largeur de la fente d'entrée est de  $40 \mu\text{m}$ .

Pendant l'analyse, la surface de l'échantillon éclairée varie comme  $1/\sin(\theta)$ . Autour de l'angle critique, la surface éclairée est de l'ordre de  $1 \text{ cm}^2$ . L'exploration angulaire est de  $\theta = 0^{\circ}$  à  $5,5^{\circ}$ . Le pas minimum est de 4 secondes d'arc ( $0,0011^{\circ}$ ), et la résolution angulaire est meilleure que  $0,005^{\circ}$ .

Un ordinateur de contrôle permet d'acquérir les courbes de réflectivité donnant l'intensité mesurée en fonction de l'angle du détecteur ( $2\theta$ ).

### 2.2.2 Seifert : réflectomètre en incidence rasante de Xenocs

L'appareil utilisé chez Xenocs est un réflectomètre SEIFERT XRD 3003TT. Il est composé d'un tube à rayons X (source), d'une alimentation électrique (générateur), d'un détecteur, d'un goniomètre  $\theta/\theta$ , d'un système de fentes et d'un porte-échantillon. Pendant la mesure l'échantillon reste fixe, la source et le détecteur faisant des mouvements symétriques. La figure 12 représente le schéma de principe de ce réflectomètre.

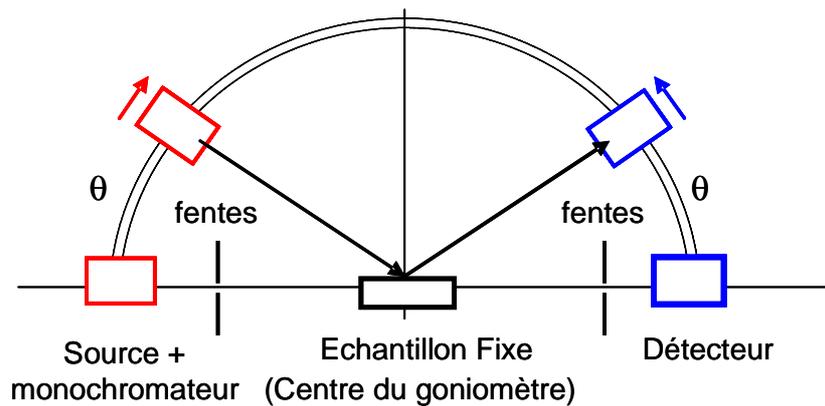


Figure 12 : Schéma de principe du réflectomètre X en incidence rasante de Xenocs (vue de côté).

La source est constituée d'une anode en cuivre d'une puissance maximale de 2200W, alimentée par un générateur délivrant une tension et une intensité de travail de 30 kV et de 20 mA respectivement.

Pour compter les photons X, l'appareil est muni d'un détecteur à scintillation à cristal NaI, équipé d'un absorbeur constitué de plaques d'Aluminium de différentes épaisseurs, utilisées pour ne pas saturer le détecteur et permettant d'avoir une dynamique de 6 ordres de grandeur. Pour le conditionnement du faisceau primaire, l'appareil dispose d'un monochromateur à double réflexion utilisant deux cristaux de germanium, placé avant l'échantillon, juste après la source.

Le porte échantillon est constitué d'une table X-Y-Z avec un déplacement en angle (appelé angle CHI). Les quatre axes sont motorisés et contrôlés par l'ordinateur. La taille du faisceau est conditionnée par l'utilisation d'un système de fentes placées après le monochromateur et devant le détecteur.

Pendant l'analyse, la surface éclairée de l'échantillon est de l'ordre de  $0,5 \text{ cm}^2$  autour de l'angle critique. L'exploration angulaire est de  $\theta = 0^\circ$  à  $70^\circ$ . Le pas minimum est de  $0,002^\circ$ , et la résolution angulaire est meilleure que  $0,005^\circ$ .

Un ordinateur de contrôle permet d'acquérir les courbes de réflectivité donnant l'intensité mesurée en fonction de l'angle du détecteur.

### 2.2.3 Analyse d'une courbe de réflectivité

La figure 13 montre une courbe expérimentale de réflectivité typique obtenue pour une multicouche Cr/Sc. Aux angles inférieurs à l'angle critique ( $\theta_c$ ), on observe un plateau de réflectivité dû à la réflexion totale du faisceau incident sur la surface de l'échantillon. La forme du plateau de réflexion totale est très sensible aux effets géométriques tels que l'alignement de l'échantillon ainsi qu'à sa possible déformation. On observe ensuite une série de pics principaux (pics de Bragg) qui sont séparés par N-2 pics secondaires (N étant le nombre de périodes de l'empilement). Ces pics secondaires ou franges de Kiessig correspondent à la réflexion associée à l'interférence entre l'interface empilement / substrat et empilement / air, et par conséquent à l'épaisseur totale de l'empilement.

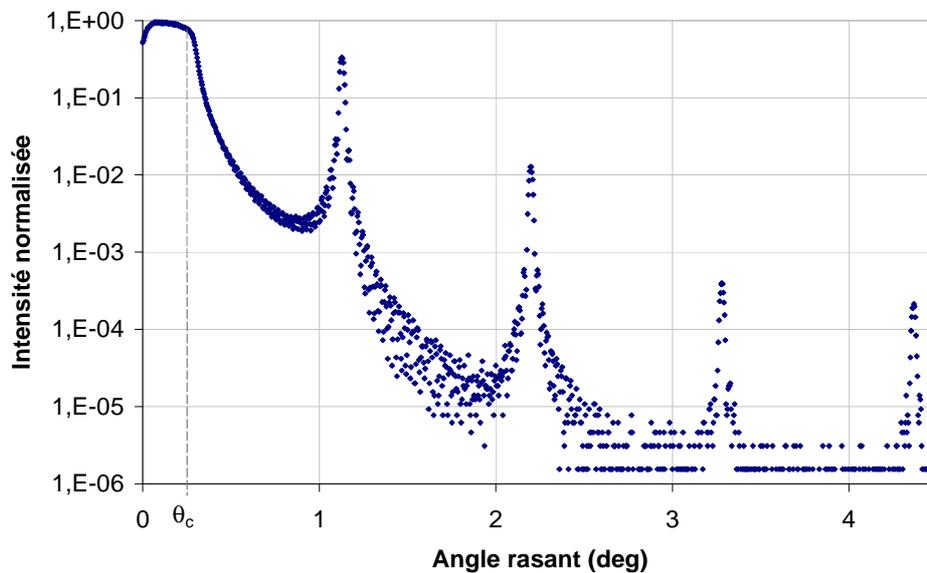


Figure 13 : Courbe de réflectivité des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc.

L'interprétation d'une courbe expérimentale de réflectométrie des rayons X en incidence rasante s'effectue en plusieurs temps.

#### 2.2.3.1 Analyse qualitative

Tout d'abord, une analyse qualitative des courbes peut être réalisée. L'allure des courbes peut nous renseigner sur différents paramètres de l'empilement. Pour une multicouche à deux matériaux, un ordre de grandeur du rapport des deux matériaux peut être déterminé. En effet, si on considère que l'amplitude réfléchi par chaque interface est faible la réflectivité d'un empilement à deux matériaux s'écrit [5] :

$$R = 4R_{12} \sin^2(m\pi\Gamma) \quad (2.2)$$

où  $R_{12}$  est la réflectivité pour une période et  $\Gamma$  est le rapport d'un matériau à la période totale. Les pics d'ordre  $m$  tels que  $m = n / \Gamma$  (avec  $n$  entier) sont éteints. Par exemple si  $\Gamma = 0,5$  les ordres pairs seront éteints.

Une deuxième information peut également être déduite graphiquement : l'intensité des pics de Bragg est fortement reliée au contraste d'indice entre les deux matériaux mais aussi à la rugosité des interfaces. Une décroissance rapide de la réflectivité peut être le signe d'une forte rugosité aux interfaces. En effet, avec l'approximation de Debye et Waller l'intensité ( $R$ ) obtenue avec une rugosité  $\sigma_{RX}$  est reliée à l'intensité sans rugosité ( $R_{th}$ ) par la relation [4]:

$$R = R_{th} e^{-\left(\frac{2\pi n \sigma_{RX}}{d}\right)^2} \quad (2.3)$$

Par exemple, la figure 14 représente les courbes simulées de réflectométrie des rayons X en incidence rasante pour une multicouche Cr/Sc de 40 périodes pour différentes rugosités d'interface  $\sigma_{RX}$ . La période ( $d_0$ ) est de 4 nm. Nous constatons une diminution de l'intensité des pics de Bragg et une diminution de l'enveloppe de la courbe quand la rugosité augmente. Cette rugosité nous renseigne sur la qualité des interfaces de l'empilement.

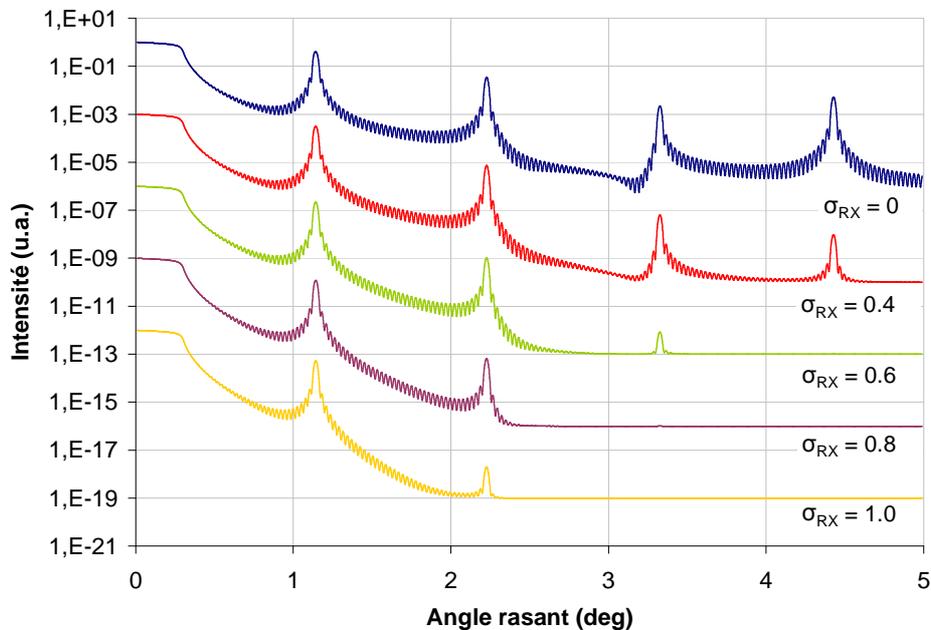


Figure 14 : Courbes simulées de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc de 40 périodes en fonction de la rugosité ( $\sigma_{RX}$ ) à chaque interface. Les courbes ont été décalées en ordonnée pour plus de lisibilité.

La réflectivité des multicouches est également affectée par les erreurs d'épaisseurs qui peuvent être dues à la variation des conditions de dépôt pendant la fabrication de l'empilement. Cette variation d'épaisseur peut être observée de trois manières sur les courbes de réflectivité en X rasants.

Premièrement, elle peut être aléatoire. Par exemple, la vitesse de passage de l'échantillon au cours des dépôts peut varier de manière aléatoire. Dans ce cas, l'intensité des pics de Bragg diminue et les pics s'élargissent. Par exemple, sur la figure 15 sont représentées les courbes de réflectométrie avec une variation aléatoire ( $d = d_0 \pm v$ ), où  $v$  varie de 0 à 0,1 nm.

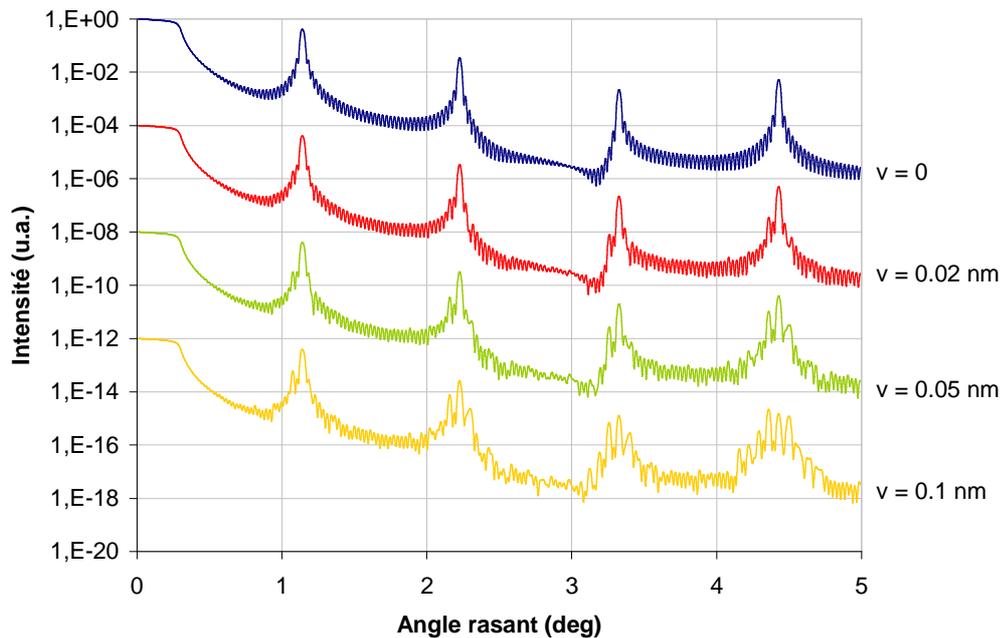


Figure 15 : Courbes simulées de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc de 40 périodes, avec une variation d'épaisseur aléatoire ( $v$ ) sur la période  $d$ .

La variation d'épaisseur dans l'empilement peut être continue. C'est le cas, par exemple, lors d'une dérive lente des conditions de dépôt telles que la température ou la pression. Ceci peut se produire surtout pour les procédés de dépôts durant plusieurs heures. Dans ce cas, la variation d'épaisseur peut être simulée par un gradient. Quatre courbes avec une variation linéaire d'épaisseur de pentes  $g$  différentes ( $d = d_0 + g \cdot i$  où  $i$  est le numéro de période) sont représentées sur la figure 16. On constate qu'une variation aléatoire dégrade plus vite la réflectivité qu'une variation continue d'épaisseur.

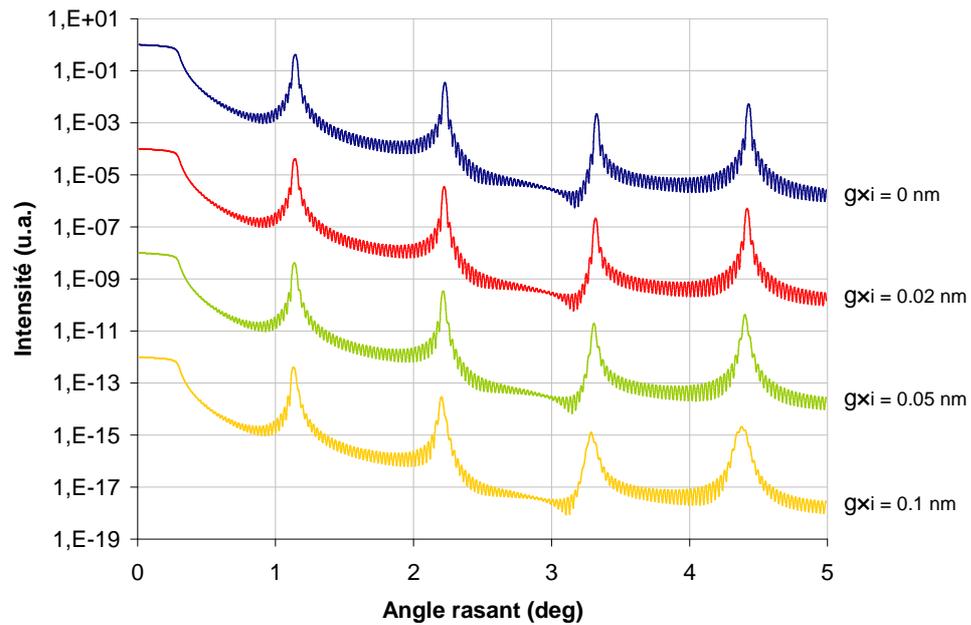


Figure 16 : Courbes simulées de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc de 40 périodes, avec une variation continue d'épaisseur. L'épaisseur varie linéairement (pente  $g$ ) dans l'empilement.

Enfin, la variation d'épaisseur peut être brutale, la pression ou la puissance appliquée sur les cibles pouvant passer d'une valeur à une autre. L'empilement est alors composé de deux empilements périodiques de périodes différentes. Ceci se traduit par un dédoublement des pics de Bragg.

Comme nous venons de le voir, l'intensité et la largeur des pics de Bragg en X rasants ( $\lambda = 0,154$  nm) sont de bons indicateurs de la qualité de l'empilement, mais ceci ne garantit pas une bonne réflectivité aux longueurs d'onde d'utilisation (XUV). En effet, les matériaux sont en général peu absorbants à  $\lambda = 0,154$  nm ( $E = 8050,6$  eV). La réflectivité à cette longueur d'onde est donc peu affectée par les imperfections aux interfaces ainsi que par les impuretés présentes dans les couches. De plus les constantes optiques des matériaux peuvent varier fortement entre  $\lambda = 0,154$  nm et la longueur d'onde d'utilisation. Une mesure sur rayonnement synchrotron à la longueur d'onde réelle d'utilisation est absolument indispensable.

### 2.2.3.2 Analyse quantitative

Dans un deuxième temps, une analyse quantitative des courbes peut être réalisée. La période moyenne de l'empilement peut être déduite de la position des différents pics de Bragg par l'intermédiaire de la loi de Bragg corrigée pour les petits angles qui s'exprime par :

$$m\lambda = 2d \sin\theta \sqrt{1 - \frac{2\delta}{\sin^2\theta}}, \text{ avec } \delta \ll 1 \text{ et } k \ll \delta, \quad (2.4)$$

où  $m$  est l'ordre du pic de Bragg,

$d$  la période,

$\theta$  l'angle rasant du pic de Bragg d'ordre  $m$ ,

et  $\tilde{n} = 1 - \delta + i^*k$  ( $\tilde{n}$  étant l'indice complexe moyen de l'empilement, avec  $k$  le coefficient d'absorption et  $(1 - \delta)$  la partie réelle de l'indice).

Différentes méthodes peuvent être utilisées pour calculer l'épaisseur de l'empilement.

- *Méthode 1 : Equation linéaire*

En élevant au carré la formule de Bragg modifiée on obtient :

$$\sin^2\theta = \frac{m^2 \times \lambda^2}{4d^2} + \sin^2\theta_c, \text{ avec } \sin\theta_c = \sqrt{2\delta} \quad (2.5)$$

En traçant la droite  $\sin^2\theta$  en fonction de  $m^2$  on obtient la période et l'angle critique  $\theta_c$  :

$$d = \frac{\lambda}{2\sqrt{a}} \quad \text{et} \quad \theta_c = \sqrt{\arcsin(b)},$$

avec  $a$  la pente de la droite et  $b$  l'ordonnée à l'origine.

- *Méthode 2 : méthode de Henke [7]*

A partir de l'équation 2.4, nous pouvons écrire la loi de Bragg de la manière suivante :

$$\frac{2 \sin \theta}{m\lambda} = \frac{1}{d} \left( 1 - \frac{2\delta}{\sin^2\theta} \right)^{-1/2} \quad (2.6)$$

En effectuant un développement limité de  $\left( 1 - \frac{2\delta}{\sin^2\theta} \right)^{-1/2}$  lorsque  $\frac{2\delta}{\sin^2\theta}$  tend vers 0, nous pouvons approximer  $\left( 1 - \frac{2\delta}{\sin^2\theta} \right)^{-1/2}$  à  $\left( 1 + \frac{2\delta}{\sin^2\theta} \right)$ . De ce fait, l'équation 2.6 devient :

$$\frac{2 \sin \theta}{m\lambda} = \frac{1}{d} \left( 1 + \frac{2\delta}{\sin^2\theta} \right)^c \quad (2.7)$$

<sup>c</sup> L'équation 47 de la référence [7] est erronée :  $d$  et  $d_x$  sont inversés.

En traçant la droite  $\frac{2 \sin \theta}{m\lambda}$  en fonction de  $\frac{1}{\sin^2 \theta}$ , on obtient :

$$a = \frac{\delta}{d} \quad \text{et} \quad b = \frac{1}{d},$$

avec  $a$  la pente de la droite et  $b$  l'ordonnée à l'origine.

Ces méthodes permettent de déterminer  $d$  et  $\delta=1-n$  avec une bonne précision, à condition de connaître très précisément les positions angulaires de chaque pic (à mieux que  $0,01^\circ$  en  $2\theta$ ).

En fonction de la méthode utilisée, les périodes calculées et les angles critiques peuvent être différents. Les résultats dépendent également du nombre de pics de Bragg utilisés et de l'ordre de ces pics. Il est intéressant de croiser les données issues de ces méthodes afin de mieux évaluer la validité de chaque méthode et du résultat obtenu. Par exemple, le tableau 3 représente les valeurs de périodes calculées par les deux méthodes décrites au paragraphe précédent, pour trois systèmes multicouches différents. Les périodes calculées diffèrent faiblement avec la méthode utilisée : un écart maximum de 0,01 nm est observé.

Multicouche	Méthode 1	Méthode 2
(Mo/B <sub>4</sub> C)×30	d = 8,96 nm	d = 8,95 nm
(Cr/Sc)×60	d = 4,10 nm	d = 4,09 nm
(W/Si <sub>x</sub> N <sub>y</sub> )×75	d = 2,95 nm	d = 2,95 nm

Tableau 3 : Périodes calculées par deux méthodes différentes, pour trois systèmes multicouches.

De plus, une série de 6 mesures effectuées sur un même échantillon et ceci sur les deux réflectomètres (LCFIO et Xenocs) nous ont permis d'estimer les barres d'erreur sur les périodes calculées. Pour les deux réflectomètres nous obtenons des barres d'incertitude de  $\pm 0,1\%$  (pic-vallée).

### 2.2.3.3 Ajustement des courbes de réflectivité

Dans un troisième temps, l'échantillon peut être caractérisé en ajustant la courbe expérimentale à la courbe théorique par simulation avec le logiciel IMD. Cet ajustement permet de déterminer les rugosités interfaciales en plus de la période. Un exemple est donné en figure 17 pour une multicouche Cr/Sc de 60 périodes. Les différents paramètres ajustés sont présentés dans le tableau 4.

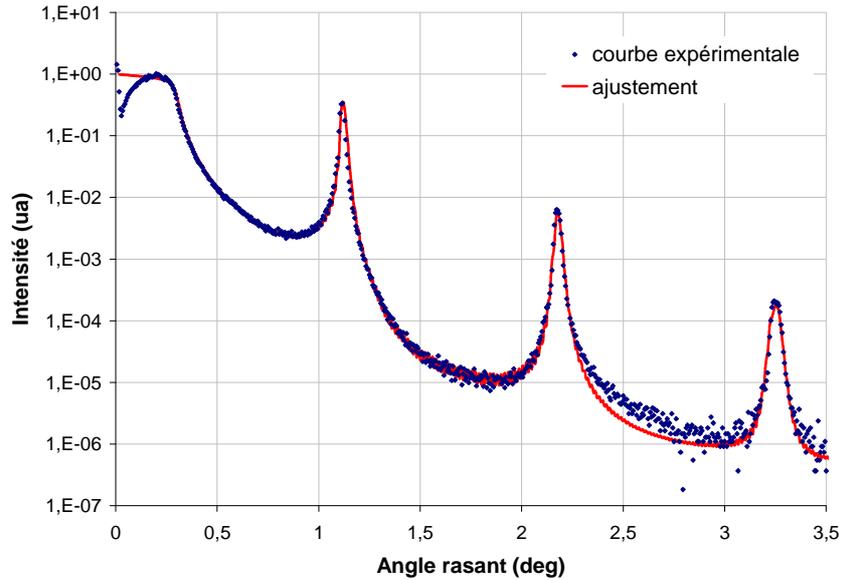


Figure 17 : Courbe expérimentale de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d’une multicouche (Cr/Sc)×60. La courbe théorique a été ajustée avec les paramètres du tableau 4.

Ambiant : vacuum	
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> layer : z=0.6nm, $\sigma(\text{vacuum/Cr}_2\text{O}_3)=0.6\text{nm}$	
[Cr/Sc] multilayer : N=60, graded-d	
Cr layer :	z=0.656xz[Sc]nm, $\sigma(\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Cr})=0.6\text{nm}$ , $\sigma(\text{Sc/Cr})=0.5\text{nm}$
Sc layer :	z=2.445+0.01*i+0.00*i <sup>2</sup> =2.446 to 2.505nm, $\sigma(\text{Cr/Sc})=0.35\text{nm}$
Si substrate, $\sigma=0.3\text{nm}$	

Tableau 4 : Structure de l’empilement obtenu par ajustement à la courbe expérimentale.

L’ajustement des courbes simulées et expérimentales est imparfait au niveau du plateau de réflexion totale, à cause des effets de taille du substrat. De ce fait, la normalisation de la courbe expérimentale par rapport au plateau de réflectivité totale peut fausser les données. La détermination des rugosités dépend fortement de cette normalisation et par conséquent est très sensible à l’alignement et à la taille de l’échantillon.

Si l’on introduit les paramètres extraits de ce type d’ajustement dans le calcul théorique de la réflectivité à l’énergie d’utilisation, on peut déduire un ordre de grandeur de la réflectivité, mais la mesure de la réflectivité des miroirs interférentiels multicouches à la l’énergie d’utilisation reste la caractérisation indispensable pour déterminer les performances optiques des multicouches.

### 2.3. Réflectométrie XUV

La réflectométrie XUV est la méthode de caractérisation indispensable pour évaluer les performances des miroirs multicouches. Elle permet de déterminer les propriétés des multicouches à l'énergie (ou à la longueur d'onde) d'utilisation et sous des angles d'incidence proches des angles sous lesquels seront utilisés les miroirs dans les différentes applications. En effet, les performances d'un miroir multicouche sont liées aux épaisseurs des différentes couches, à la qualité des interfaces mais surtout aux indices des matériaux à l'énergie d'utilisation.

Plusieurs sources XUV peuvent être employées pour effectuer ces mesures. Dans cette thèse toutes les mesures de réflectivité ont été réalisées avec le rayonnement synchrotron sur deux lignes différentes : la ligne BEAR (Bending magnet for Emission, Absorption and Reflectivity) du rayonnement synchrotron d'ELETTRA (Trieste, Italie) et la ligne 6.3.2. « Calibration and standards » du rayonnement synchrotron de l'ALS (Advanced Light source, Berkeley, Etats-Unis).

Le rayonnement synchrotron est une lumière émise par des électrons relativistes, qui tournent dans un anneau de stockage. Il est obtenu par des dispositifs magnétiques qui courbent la trajectoire des électrons ou les font osciller, et ils perdent alors de l'énergie sous forme de lumière. Les dispositifs magnétiques utilisés sont soit des aimants de courbures, soit des onduleurs (succession d'aimants alternés). Le rayonnement synchrotron est ensuite dirigé, sélectionné et conditionné par des systèmes optiques qui constituent des « lignes de lumières » vers les stations expérimentales.

Les deux synchrotrons que nous avons utilisés sont de troisième génération. Le spectre émis est continu sur une large gamme de longueurs d'onde (des ondes millimétriques au rayon X) et a un flux intense.

#### 2.3.1 Description des lignes de mesure avec le rayonnement synchrotron

Les deux lignes de mesure décrites ci-dessus sont situées sur un aimant de courbure. Les principales caractéristiques de ces lignes sont regroupées dans le tableau 5.

	BEAR@Elettra [8, 9]	6.3.2.@ALS [10]
Energie des électrons	2 GeV	1,9 GeV
Courant des électrons	300 mA	400 mA
Brillance en sortie d'aimants de courbures (photons/s/mm <sup>2</sup> /mrad <sup>2</sup> /0.1%bw)	~10 <sup>14</sup>	~10 <sup>15</sup>
Gamme spectrale	5 à 1600 eV	25 à 1300 eV

Tableau 5 : Caractéristiques principales des lignes BEAR et 6.3.2. des rayonnements synchrotrons d'Elettra (Trieste, Italie) et de l'ALS (Berkeley, Etats-Unis).

Afin de couvrir ces gammes d'énergies avec une résolution spectrale élevée, les lignes BEAR et 6.3.2. sont équipées de différents monochromateurs. Les caractéristiques de ces monochromateurs sont détaillées dans le tableau 6.

	BEAR@Elettra [8, 9]			6.3.2.@ALS [10]		
Monochromateur	GNIM	G1200	G1800	G1	G2	G3
Nombre de ligne/mm	1200	1200	1800	300	600	1200
Incidence	normale	rasante	rasante	rasante	rasante	rasante
Gamme spectrale (eV)	5-45	40-800	800-1600	50-200	100-500	200-1000

Tableau 6 : Caractéristiques principales des monochromateurs utilisés sur les lignes BEAR et 6.3.2.

Les monochromateurs utilisés au cours de cette thèse sont G1200 pour la ligne BEAR et G2 pour la ligne 6.3.2. Le flux obtenu après G1200 est de  $5 \times 10^{10}$  photons par seconde à 100 eV avec une résolution  $\Delta E/E$  de 3000. Le flux obtenu après G2 est de  $10^{11}$  photons par seconde à 100 eV avec une résolution  $\Delta E/E$  de 5000. Les mesures du flux en fonction de l'énergie pour les deux lignes sont représentées en figure 18 [9, 10].

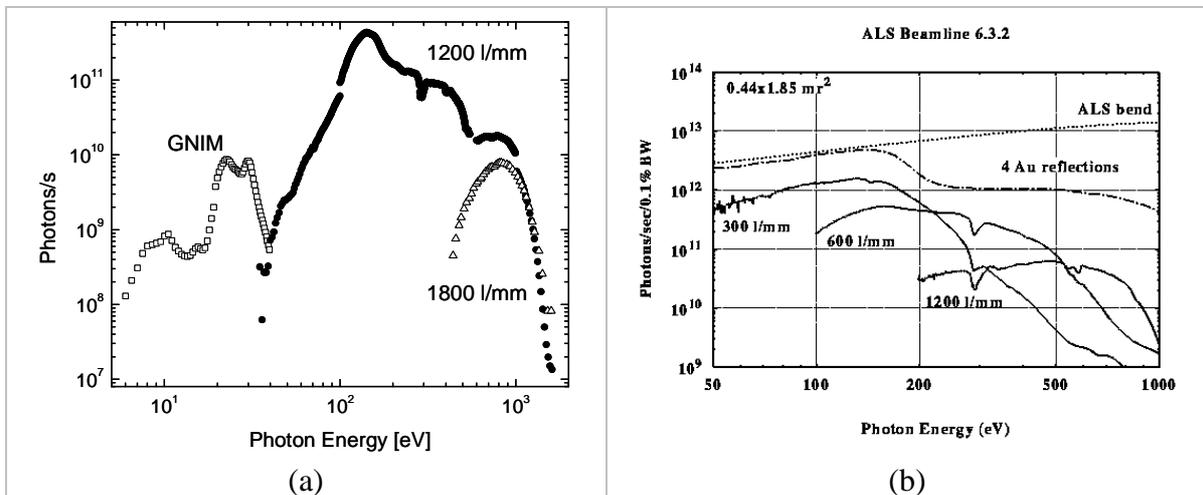


Figure 18 : Flux mesuré en fonction de l'énergie, pour la ligne BEAR (a) et pour la ligne 6.3.2. (b).

Pour les deux lignes de mesure, le flux incident est mesuré à l'aide de photodiodes en silicium, chacune étant reliée à un picoampèremètre. Sur la ligne BEAR, des filtres en silicium et/ou en aluminium ( $0,4 \mu\text{m}$  et  $0,2 \mu\text{m}$ ) peuvent être intercalés pour atténuer la contribution des harmoniques élevées des monochromateurs en incidence rasante pour des énergies inférieures à 100 eV. Sur la ligne 6.3.2., une pureté spectrale élevée est obtenue (99,75%) en utilisant une combinaison de filtres et un suppresseur d'ordre (système composé de trois miroirs en incidence rasante [10]).

La figure 19 (a) représente le schéma de la chambre de mesure de la ligne BEAR, avec les mouvements de rotation et de translation possibles pour le support de l'échantillon (manipulator) et des détecteurs (analyser) [11]. La figure 19 (b) représente une photo de la chambre de mesure de la ligne 6.3.2.

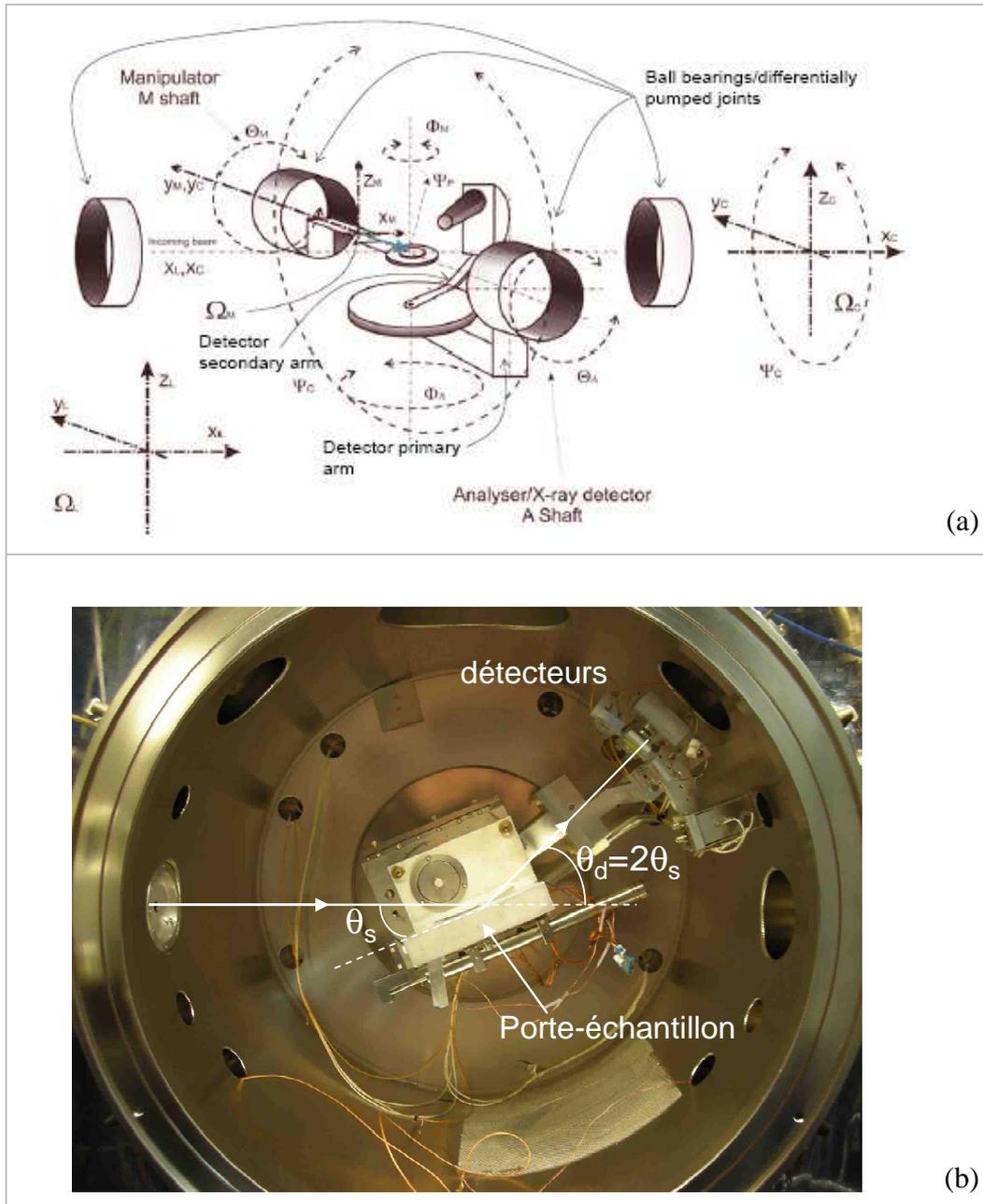


Figure 19 : (a) Schéma de la chambre de mesure de la ligne BEAR à Elettra (Trieste). (b) Photo de la chambre de mesure de la ligne 6.3.2 à l'ALS (Berkeley).

Les courses et résolutions des différents degrés de liberté possibles sur les deux lignes de mesure sont regroupées dans le tableau 7.

	BEAR@Elettra [8]		6.3.2.@ALS [12]	
	Course	Résolution	Course	Résolution
Rotation détecteur	$\Theta_A = 360^\circ$	$0,001^\circ$	$\theta_d = \pm 180^\circ$	$0,002^\circ$
Rotation détecteur	$\Phi_A = 220^\circ$	$0,01^\circ$	-	-
Rotation de la chambre	$\Psi_c = 100^\circ$	$0,1^\circ$	-	-
Translation échantillon x	15 mm	$1 \mu\text{m}$	100 mm	$1 \mu\text{m}$
Translation échantillon y	15 mm	$1 \mu\text{m}$	100 mm	$1 \mu\text{m}$
Translation échantillon z	15 mm	$1 \mu\text{m}$	20 mm	$1 \mu\text{m}$
Rotation échantillon	$\Theta_m = 360^\circ$	$0,001^\circ$	$\theta_s = \pm 90^\circ$	$0,002^\circ$
Rotation azimutal échantillon	$\Phi_m = 200^\circ$	$0,01^\circ$	-	-
Précession manipulateur	$\Psi_p = 3^\circ$	$0,01^\circ$	tilt = $\pm 1^\circ$	-

Tableau 7 : Courses et résolutions des différents degrés de liberté des goniomètres des chambres de mesure des lignes BEAR et 6.3.2.

Le goniomètre de la ligne de mesure BEAR compte 9 degrés de liberté alors que celui de la ligne 6.3.2. en compte 6. La taille maximale d'un échantillon pouvant être mesuré sur la ligne BEAR est de  $\varnothing = 20$  mm, alors qu'elle est de  $\varnothing = 200$  mm sur la ligne 6.3.2. La taille du faisceau incident sur l'échantillon est de  $(10 \times 100) \mu\text{m}^2$  sur la ligne BEAR et de  $(10 \times 300) \mu\text{m}^2$  sur la ligne 6.3.2.

Sur la ligne BEAR, la sélection de la partie centrale du faisceau à l'aide d'une fente permet d'obtenir une polarisation rectiligne (S). Toutes les mesures effectuées pendant cette thèse ont été réalisées avec une fente de polarisation de 2 mm. La chambre peut tourner entièrement autour de l'axe optique. Ceci permet de changer de polarisation par simple rotation de la chambre. Cette polarisation a été estimée à 80 % S à  $E = 392,4$  eV, en mesurant la réflectivité d'une multicouche Cr/Sc pour les deux positions de la chambre d'analyse.

Sur la ligne 6.3.2., la polarisation du faisceau est rectiligne et a été estimée à 90% S grâce à des mesures effectuées par E. Gullikson, le responsable de la ligne.

### 2.3.2 Mesure de la réflectivité

La mesure de réflectivité s'effectue en deux temps. On mesure d'abord le courant correspondant au faisceau direct incident ( $I_{d1}$ ) et le courant des électrons dans l'anneau ( $I_{dRing}$ ). Puis l'échantillon est placé dans le faisceau et nous enregistrons le faisceau réfléchi ( $I_{r1}$ ) ainsi que le courant des électrons dans l'anneau ( $I_{rRing}$ ). La réflectivité absolue est calculée par le rapport des deux courants du faisceau direct et réfléchi normalisés au courant des électrons dans l'anneau.

$$R = \frac{\frac{I_{r1} - I_{rb1}}{I_{rRing}}}{\frac{I_{d1} - I_{db1}}{I_{dRing}}} \quad (2.8)$$

- où  $I_{r1}$  est le courant sur la diode de mesure correspondant au faisceau réfléchi ;  
 $I_{rRing}$  est le courant des électrons dans l'anneau correspondant au faisceau réfléchi ;  
 $I_b$  est le bruit de fond moyen sur chaque instrument dépendant du calibre de l'instrument lors de la mesure ;  
 $I_{d1}$  est le courant sur la diode de mesure correspondant au faisceau direct ;  
 $I_{dRing}$  est le courant des électrons dans l'anneau correspondant au faisceau direct.

La mesure de réflectivité peut s'effectuer à énergie constante en faisant varier l'angle, ou à angle constant en faisant varier l'énergie. Pour la plupart des mesures de réflectivité XUV décrites dans cette thèse, nous avons d'abord commencé par effectuer une mesure à énergie constante (celle de l'application), afin de déterminer l'angle auquel la multicouche réfléchit le mieux, puis nous avons réalisé une seconde mesure à angle constant, l'angle choisi étant l'angle déterminé par la première mesure.

La précision en énergie est de l'ordre 0,125% ( $\Delta E = 0,5$  eV à  $E = 400$  eV) sur la ligne BEAR, et de 0,012% (à  $E = 100$  eV) sur la ligne 6.3.2. La précision sur la réflectivité a été estimée à  $\Delta R/R \approx 0,5\%$  sur la ligne BEAR, alors qu'elle est de l'ordre de  $\Delta R/R \approx 0,2\%$  sur la ligne 6.3.2. La précision angulaire est de  $\pm 0,1^\circ$  sur la ligne BEAR, et de  $\pm 0,02^\circ$  sur la ligne 6.3.2. D'après des simulations effectuées avec le logiciel IMD, un décalage en angle de  $0,1^\circ$  pour une énergie donnée engendrerait un décalage en énergie de l'ordre de 1 eV sur le pic de réflectivité.

En résumé, la méthodologie employée au cours de ces travaux de thèse est la suivante. Dans un premier temps, elle consiste à définir les spécifications des multicouches à déposer par le biais de la simulation. Puis, après avoir élaboré les empilements ainsi spécifiés, la réflectométrie des rayons X en incidence rasante nous permet de les caractériser et de vérifier que les épaisseurs déposées sont conformes aux valeurs visées d'une part, et, d'autre part, en ajustant les courbes expérimentales et calculées par simulation, il nous est possible de déduire d'autres paramètres structuraux des multicouches tels que les rugosités interfaciales  $\sigma_{RX}$ . A l'aide des paramètres déduits de ces ajustements, nous pouvons prédire les performances des empilements à l'énergie d'utilisation. Finalement, il nous est indispensable de caractériser ces multicouches par réflectométrie XUV, afin de vérifier leurs performances finales, mais aussi de comparer les pouvoir réflecteurs avec ceux

simulés à l'aide des résultats ajustés des courbes de réflectométrie des rayons X en incidence rasante. Ce dernier aspect est très important car il pourrait nous permettre d'avoir un point de vue prédictif plus réaliste sur les performances finales des multicouches, et de ce fait nous permettrait éventuellement de nous affranchir des mesures de réflectométrie XUV.

D'autres méthodes d'analyse ont été utilisées pour caractériser certaines couches et / ou multicouches, telles que la microscopie à force atomique (AFM), l'ellipsométrie, ou encore la spectroscopie de photoélectrons : X-ray Photoelectron Spectroscopy (XPS). Ces méthodes de caractérisation seront décrites dans les parties concernées.

## Figures du chapitre 2

---

Figure 1 : Photographie du système de dépôt MP800S.....	33
Figure 2 : Photographie des cibles.....	34
Figure 3 : Schéma de principe du bâti de pulvérisation. ....	35
Figure 4 : Photographie du système de dépôt TOM.....	36
Figure 5 : Photographie des cibles recouvertes de caches d'uniformité en cuivre.....	36
Figure 6 : Simulation de la trajectoire d'un échantillon au dessus d'une boîte d'émission de plasma de la MP800S, pour un rayon donné.....	38
Figure 7 : Uniformité radiale d'une couche simple de molybdène déposée sur la MP800S.....	38
Figure 8 : Uniformité d'une multicouche Cr/Sc déposée sur TOM selon l'axe x (a) et selon l'axe y (b).....	39
Figure 9 : Interface utilisateur du programme de simulation IMD.....	41
Figure 10 : Exemple de courbe de réflectivité obtenue par simulation IMD. ....	42
Figure 11 : Schéma de principe du réflectomètre X en incidence rasante du LCFIO (vue de dessus).....	43
Figure 12 : Schéma de principe du réflectomètre X en incidence rasante de Xenocs (vue de coté).....	44
Figure 13 : Courbe de réflectivité des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc.....	45
Figure 14 : Courbes simulées de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc de 40 périodes en fonction de la rugosité ( $\sigma_{RX}$ ) à chaque interface. Les courbes ont été décalées en ordonnée pour plus de lisibilité. ....	46
Figure 15 : Courbes simulées de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc de 40 périodes, avec une variation d'épaisseur aléatoire ( $v$ ) sur la période $d$ . ....	47
Figure 16 : Courbes simulées de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d'une multicouche Cr/Sc de 40 périodes, avec une variation continue d'épaisseur. L'épaisseur varie linéairement (pente $g$ ) dans l'empilement.....	48
Figure 17 : Courbe expérimentale de réflectométrie des rayons X en incidence rasante d'une multicouche (Cr/Sc) $\times$ 60. La courbe théorique a été ajustée avec les paramètres du tableau 4.....	51
Figure 18 : Flux mesuré en fonction de l'énergie, pour la ligne BEAR (a) et pour la ligne 6.3.2. (b).....	53
Figure 19 : (a) Schéma de la chambre de mesure de la ligne BEAR à Elettra (Trieste). (b) Photo de la chambre de mesure de la ligne 6.3.2 à l'ALS (Berkeley).....	54

---

## Références du chapitre 2

---

- [1] H. Klostermann, F. Fietzke, O. Zywitzki and K. Goedicke, « High-Density Pulsed Plasmas for the Deposition of Hard Coatings on Three-Dimensional Substrates », Proc. SVC **45**, 402 (2002)
  - [2] C. Montcalm *et al.* « Multilayer reflective coatings for extreme-ultraviolet lithography » Proc. SPIE **3331**, 42-50 (1998).
  - [3] J. Gautier, « Etude et élaboration de revêtements multicouches pour l'optique extrême UV dans la gamme spectrale 30-50 nm », Thèse de l'Université Paris Sud, 2005.
  - [4] D. L. Windt, « IMD - Software for modeling the optical properties of multilayer films », Comput. Phys. **12**, 360 (1998).
  - [5] E. Spiller, Soft X-Ray Optics (SPIE, Bellingham, Wash 1994).
  - [6] L. Nevot *et al.* « Characterization of X-UV multilayers by grazing incidence X-ray reflectometry », Phys Appl **23** 1675-1686 (1988).
  - [7] B. L. Henke, E. M. Gullikson, J. Kerner, A. L. Oren, and R. L. Blake, « Design and Characterization of X-Ray Analyzers for the 50-1000 eV Region », J. of X-Ray Sci. and Technol. **2**(1), 17-80 (1990).
  - [8] S. Nannarone *et al.* « The BEAR Beamline at Elettra », AIP Conference Proceedings **708**, 450-453 (2004).
  - [9] F. Borgatti *et al.* « The new BEAR beamline : a short presentation », Elettra news **47** (2003), <http://www.elettra.trieste.it/science/elettranews/volume47/en117.html>.
  - [10] <http://www-cxro.lbl.gov/als6.3.2/>
  - [11] L. Pasquali *et al.* « The UHV Experimental Chamber For Optical Measurements (Reflectivity and absorption) and Angle Resolved Photoemission of the Bear Beamline at ELETTRA » AIP Conference Proceedings **705**, 1142-1145 (2004).
  - [12] E. Gullikson, « High-Precision EUV Calibration and Standards - Beamline 6.3.2. » ALS, Berkeley Lab.
-