Etude de matériaux multicouches par réflectivité X en incidence rasante. Méthode par dispersion d'énergie. Comparaison théorie-expérience

H. Duval, J. Malaurent, G. Cauchon, P. Dhez

► **To cite this version:**

H. Duval, J. Malaurent, G. Cauchon, P. Dhez. Etude de matériaux multicouches par réflectivité X en incidence rasante. Méthode par dispersion d'énergie. Comparaison théorie-expérience. Journal de Physique IV Proceedings, 1996, 06 (C4), pp.C4-409-C4-414. 10.1051/jp4:1996437 . jpa-00254320

HAL Id: jpa-00254320

<https://hal.science/jpa-00254320>

Submitted on 1 Jan 1996

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Etude de matériaux multicouches par réflectivité X en incidence rasante. Méthode par dispersion d'énergie. Comparaison théorie-expérience

H. Duval, J.C. Malaurent, G. Cauchon et P. Dhez*

Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France

* LSAI, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France

Résumé : L'étude de la structure des multicouches par réflectivité X en incidence rasante est abordée en utilisant la méthode de dispersion d'énergie. On illustre l'intérêt d'associer le calcul et la mesure de la répartition spectrale réfléchie, lorsqu'une couche est éclairée par un rayonnement X polychromatique à un angle d'incidence choisi, en étudiant *in situ* la réflectivité d'un dépôt Mo/Si en cours d'élaboration. Après avoir vérifié la validité des calculs effectués en utilisant les tables d'indice déduits des valeurs de Berger et Hubbell, on montre comment la connaissance simultanée des résultats calculés et mesurés permet de contrôler la qualité d'un dépôt. La méthode qui utilise une bande d'énergie comprise entre 4 et 40 keV est comparée à celle de Spiller dont le contrôle du dépôt est réalisé à l'aide de rayons X mous.

Abstract : The grazing incidence angle multilayer reflectivity using the Energy Dispersive Method is presented. Reflectivity calculations and measurements are used for multilayers exposed to polychromatic X-rays with a selected incidence angle; this is done for studying, *in situ*, reflectivity of a Mo/Si deposit during its growth thus permitting a quality control. The method using the 4-40 keV energy range is compared to Spiller's for which the deposit is controlled by soft X-rays.

La réflectivité X en incidence rasante est une technique particulièrement adaptée à l'étude de la structure des multicouches périodiques nanométriques. Non destructive, elle permet d'une part la détermination des paramètres caractéristiques de la structure moyenne de l'édifice artificiel, et d'autre part renseigne sur les défauts de l'empilement (rugosité, qualité des interfaces, dispersion de la valeur de l'épaisseur des couches constituantes). C'est en comparant l'intensité réfléchie obtenue expérimentalement à l'intensité calculée, en modélisant de tels défauts, que l'on parvient à caractériser la structure.

Or il existe deux méthodes pour acquérir l'intensité réfléchie par une multicouche en fonction du vecteur de diffusion $q = 4\pi \sin\theta / \lambda$.

La plus usitée consiste à mesurer cette intensité en fonction de l'angle d'incidence θ en utilisant un rayonnement monochromatique de longueur d'onde λ . Dans ce cas, la principale difficulté technique est de réaliser un balayage angulaire en $\theta/2\theta$ à très faible angle d'incidence.

L'autre méthode, moins utilisée, consiste à éclairer la multichouche avec un faisceau parallèle de rayons X blancs, sous une incidence θ fixée, et à enregistrer la répartition spectrale de l'intensité réfléchie. L'intérêt est qu'il n'y a pas de mouvement au cours de l'acquisition, ainsi l'information recueillie concerne une aire fixée de l'échantillon éclairée par le faisceau incident, puisque θ est constant. Ces avantages peuvent être mis à profit pour effectuer des mesures *in situ*.

La faisabilité de cette dernière méthode a été montrée par Dhez et al. (1992) pour tester les miroirs utilisés en optique pour les rayons X. Elle permet en quelques minutes de déterminer la répartition spectrale réfléchie par un miroir. On a ainsi accès non seulement à la réflectivité au pic (maximum du pic de Bragg du premier ordre) et à la bande passante (largeur à mi-hauteur de ce pic) mais aussi au recouvrement d'ordre (influence dans le spectre des ordres supérieurs), cela quelque soit l'angle d'incidence θ choisi.

La première méthode peut apparaître comme mieux appropriée s'il s'agit de déduire la structure de la multicouche à partir de la mesure de la réflectivité. En effet, la plupart des mesures sont effectuées à l'aide de la raie K_α du cuivre, dont la valeur de la longueur d'onde est 1,542 Å (8040 eV). Pour cette énergie, les valeurs des constantes optiques nécessaires pour les calculs de simulation sont bien connues pour tous les éléments. Effectuer de tels calculs en utilisant un rayonnement blanc, suppose une connaissance précise de ces constantes optiques dans une large bande en énergie. Celles-ci n'ont pas fait l'objet d'études expérimentales systématiques, mais il existe des valeurs calculées pour tous les éléments.

Figure 1: Calculated reflectivity versus energy for different values of the atomic scattering factor f for Mo and Si

Réflectivité calculée en fonction de l'énergie selon le choix du facteur de diffusion f des éléments Mo et Si

- (a) $f = f_0 = Z$
- (b) $f = f_0 + i \Delta f''$
- (c) $f = f_0 + \Delta f' + i \Delta f''$

L'influence sur la réflectivité d'erreurs éventuelles de ces valeurs calculées a déjà été étudiée par Duval et al. (1995). Nous illustrons ici les résultats des calculs obtenus en considérant une multicouche Mo/Si de 10 périodes déposée sur du verre, les épaisseurs respectives des

couches étant 20 Å et 30 Å. Connaître les indices des éléments de la multicouche en fonction de l'énergie revient à connaître leurs facteurs de diffusion complexe: $f = f_0 + \Delta f + i\Delta f'$, où Δf et $\Delta f'$ sont les parties réelle et imaginaire des corrections de dispersion (James 1958). Les valeurs utilisées ici sont obtenues à partir des tables de Berger et Hubbell (1987) pour la bande d'énergie située entre 4 et 10 keV. Le calcul de l'intensité réfléchie par une multicouche est basé sur celui développé par Parratt (1954).

La figure 1 permet de mettre en évidence l'influence des différents termes du facteur de diffusion sur la répartition spectrale du faisceau réfléchi. La courbe (a) montre le profil de réflectivité obtenu pour une multicouche supposée parfaite, en considérant seulement le terme f_0 . Pour la faible valeur de l'angle d'incidence utilisé ($0,9^\circ$), f_0 se réduit au nombre Z d'électrons de chaque atome. On observe le pic de Bragg du premier ordre entouré des pics secondaires, dont la bonne visibilité est due au faible nombre de périodes de l'empilement. Sur la courbe (b) la répartition spectrale calculée tient compte à la fois de f_0 et du terme imaginaire $\Delta f'$ qui traduit l'effet de l'absorption. On constate une importante diminution de l'intensité du pic de Bragg. Enfin, dans le calcul du profil de la courbe (c), l'ensemble des trois termes du facteur de diffusion sont pris en compte. On remarque que l'influence du terme de réfraction Δf est faible d'une part sur la valeur du maximum de réflectivité et d'autre part sur la largeur à mi-hauteur du pic. On peut donc en conclure que même une erreur notable sur les valeurs calculées de Δf ne peut avoir d'incidence considérable sur la réflectivité. Cette conclusion doit être nuancée si l'angle d'incidence est choisi à une valeur telle que l'énergie du maximum du pic de Bragg est située au voisinage de celle du seuil d'absorption d'un élément de l'empilement (Duval et al. 1995). Par contre l'influence de l'absorption sur la réflectivité est plus importante et il faut rechercher si des écarts aux valeurs de $\Delta f'$ conduisent à des intensités réfléchies très différentes.

Figure 2: Calculated reflectivity versus energy for different values of the Mo absorption part $\Delta f'$

Réflectivité calculée en fonction de l'énergie pour différentes valeurs du terme d'absorption $\Delta f'$ du Mo

- (b) $f = f_0 + i\Delta f'$
- (d) $f = f_0 + i0.9\Delta f'$
- (e) $f = f_0 + i0.8\Delta f'$

Sur la figure 2, la courbe (1b) précédente est comparée aux courbes (d) et (e) montrant les profils de réflectivité obtenus respectivement pour des valeurs du terme d'absorption de l'élément lourd de la multicouche (molybdène) diminuées de 10% et de 20%. Un tel écart, peu probable puisque la variation en énergie du terme d'absorption est relativement bien connue, ne provoque qu'une variation de réflectivité très limitée. Bien entendu, le même écart sur le terme d'absorption de l'élément léger (silicium) ne provoque aucun changement notable de réflectivité. On peut donc conclure que la valeur de la réflectivité en fonction de l'énergie dépend peu d'erreurs notables sur les constantes optiques. En ce qui concerne la bande en énergie comprise entre 4 keV et 40 keV, facile à utiliser, les valeurs de Δf ne sont pas connues mais, comme on vient de le voir, la seule connaissance du terme d'absorption donnée par Berger et Hubbell (1987) est suffisante pour calculer la réflectivité des multicouches.

L'étude d'une multicouche en cours d'élaboration illustre l'intérêt d'associer calcul et mesure de réflectivité en fonction de l'énergie. L'évolution *in situ* de la réflectivité d'un dépôt de Mo/Si sur un substrat de «float glass» a été étudié en collaboration avec J.P. Chauvineau de l'Institut d'Optique Théorique et Appliqué (I.O.T.A.). Dans notre cas, les deux éléments étaient alternativement évaporés sous ultravide par bombardement électronique. A titre de comparaison, pendant l'évaporation, l'épaisseur du dépôt est contrôlé par mesure de réflectivité X mous à 44 Å selon la technique mise au point par Spiller (Chauvineau et al. 1984).

Figure 3: Scheme of the *in situ* reflectometer
Schéma du montage *in situ* pour l'étude expérimentale

Pour nos mesures, la source polychromatique de rayons X est un tube à foyer fin à anode d'argent (40 kV, 4 mA) dont nous utilisons la sortie linéaire. Un faisceau de faible divergence (quelques 10^{-4} radian) est obtenu à l'aide d'un collimateur constitué de deux fentes distantes de 130 mm. La divergence latérale du faisceau est limitée par des fentes de Soller; le passage du faisceau à travers l'enceinte sous ultravide est rendu possible par deux fenêtres de kapton d'épaisseur 25 μm . Les réglages ont été facilités par l'emploi d'une caméra de position CCD avec intensificateur. La fenêtre d'un détecteur solide Si(Li) peut être déplacée verticalement de façon à intercepter soit le faisceau réfléchi par l'échantillon, soit celui émis par le tube si la multicouche est escamotée (Fig 3). Le signal recueilli par la diode Si(Li) est amplifié, puis les impulsions sont triées par un analyseur multicanal et enregistrées à l'aide d'un ordinateur PC 386. La répartition spectrale du faisceau réfléchi est obtenu en divisant, canal par canal, la nombre de photons réfléchis par le nombre de photons incidents.

Les figures 4 et 5 permettent de comparer respectivement les spectres calculés et ceux mesurés lors de l'élaboration de la multicouche. Les calculs ont été effectués en supposant une

Figure 4: Calculated reflectivity of Mo/Si multilayer in the case of 6 and 7 periods
Réflectivité calculée de la multicouche Mo/Si dans le cas de 6 et 7 périodes

Figure 5: Measured *in situ* reflectivity of Mo/Si multilayer from 5 to 8 deposited periods
Réflectivité mesurée *in situ* de la couche de Mo/Si de 5 à 8 périodes déposées

multicouche parfaite à interfaces abruptes et planes pour des couches de molybdène d'épaisseur 20 Å et de 30 Å pour le silicium. Pour une nouvelle période déposée, il apparaît une frange intermédiaire supplémentaire entre la limite de réflexion totale et le premier pic de Bragg. Par ailleurs, l'intensité de ce dernier croît et sa largeur à mi-hauteur diminue. Les courbes expérimentales obtenues pour 5, 6, 7 et 8 périodes déposées, enregistrées chacune en 250 secondes environ, montrent clairement l'apparition de nouvelles franges secondaires et l'augmentation de la réflectivité du pic de Bragg avec le nombre de périodes. On note un déplacement du pic de Bragg d'environ 400 eV vers les hautes énergies. Cela traduit une diminution de la période moyenne d'environ 1 Å (soit 2%) lorsque le nombre de périodes déposées passe de 5 à 8.

Afin d'étudier l'évolution du maximum de réflectivité du pic de Bragg, nous montrons sur la figure 6 la variation avec le nombre de couches déposées. Dans la partie supérieure, on compare les variations calculées dans le cas d'un empilement à interfaces abruptes avec celles correspondant à une augmentation régulière de la rugosité à chaque nouvelle interface. Dans la partie inférieure, les variations calculées pour des interfaces de rugosité croissantes sont comparées avec celles observées expérimentalement. La similitude des variations montre que la croissance de rugosité choisie pour la simulation est vraisemblable. Les valeurs expérimentales sont plus faibles puisque l'épaisseur des couches déposées n'est pas parfaitement régulière.

On peut conclure que la mesure *in situ* de la réflectivité en fonction de l'énergie permet de contrôler couche par couche l'évolution de la qualité de la multicouche et donc d'agir, pour corriger si nécessaire, les paramètres déterminant la fabrication du dépôt. Etant donné le domaine d'énergie du rayonnement utilisé, sa pénétration est telle que le volume diffractant de l'échantillon s'étend sur la totalité de l'empilement. De ce fait, cette méthode rend compte de la qualité de l'ensemble des couches déposées. Elle présente donc un avantage par rapport à la méthode *in situ*

de Spiller qui utilise un rayonnement X mou, donc fortement absorbé, permettant de caractériser seulement les toutes dernières couches déposées.

Figure 6a: Peak reflectivity variations versus the number of deposited layers

- * Perfect multilayer (no roughness) for all layers
- * Increasing roughness growing from the substrate to the top layer

Influence de la rugosité d'interface sur le maximum de réflectivité, en fonction du nombre de couches.

- * Interfaces abruptes
- * Interfaces dont la rugosité croît d'une interface à la suivante

Figure 6b: Comparison between calculated and observed peak reflectivity

- * Increasing roughness growing from the substrate to the top layers
- * Experimental

Comparaison des réflectivités calculées et mesurées

- * Interfaces dont la rugosité croît d'une interface à la suivante
- * Valeurs mesurées

Les auteurs remercient J.P.Chauvineau et O. Hainaut pour la collaboration qu'ils ont apportée dans la réalisation de la partie expérimentale de cette étude.

Références

- Dhez P., Duval H. et Malaurent J.C., *J. of X-Ray Science and Technology* **3**, 176-193 (1992)
 Duval H., Malaurent J.C. et Dhez P., *en cours de publication* (1995)
 James R.W., *The optical principles of the diffraction of X-rays*, G.BELL and SONS, London, (1958)
 Berger M.J. et Hubbell J.H., *Center of Radiation Research National Bureau of Standards Gaithersburg, MD 20899* (1987)
 Parrat L.G., *Physical review* **95** (1954) 359-369
 Chauvineau J.P., Corno J., Naccache D., Nevot L., Pardo B. et Valiergue L., *J. Optics (Paris)*, 1984, vol. 15, n° 4 bis, pp. 265-269