HAL
open science

Couches minces et optiques multicouches dans le domaine spectral XUV (1 nm à 60 nm)

Franck Delmotte

To cite this version:

Franck Delmotte. Couches minces et optiques multicouches dans le domaine spectral XUV (1 nm à 60 nm). Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris-Sud, 2010. tel-00490892

HAL Id: tel-00490892

https://theses.hal.science/tel-00490892v1

Submitted on 10 Jun 2010

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.

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Franck DELMOTTE

février 2010

Couches minces et optiques multicouches dans le domaine spectral XUV (1 nm à 60 nm)

Membres du jury:	- Elisabeth DUFOUR-GERGAM	(Présidente)
	- Jean-Marc FRIGERIO	(Rapporteur)
	- Juan I. LARRUQUERT	(Rapporteur)
	- Michel LEQUIME	(Rapporteur)
	- Bertrand CARRE	(Examinateur)
	- Pierre CHAVEL	(Examinateur)
	- Eric ZIEGLER	(membre invité)

Recherches effectuées au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique
(CNRS UMR8501), Groupe Systèmes et Composants Optiques.

Institut d'Optique, Campus Polytechnique, 2 av. Augustin Fresnel,
RD128, 91127 Palaiseau cedex

Avant propos

Ce document tente de résumer les recherches que j'ai menées ou encadrées ces dix dernières années au sein de l'équipe "Optique XUV" du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique.

Je tiens à remercier en premier lieu les doctorants et post-doctorants qui, par leur travail au sein de notre équipe, ont grandement contribué aux résultats présentés ici et avec lesquels j'ai réellement pris plaisir à travailler (et à manger des pizzas ou des sushis) : Julien Gautier, Aurélie Hardouin, Christophe Hecquet., Yves Menesguen et Hélène Maury.

J'adresse mes sincères remerciements à Pierre Chavel, directeur du Laboratoire pendant cette période et responsable du groupe Systèmes et Composants Optiques, ainsi qu'à Marie-Françoise Ravet, responsable de l'équipe Optique XUV jusqu'en 2008, pour la confiance et le soutien qu'ils m'ont accordés tout au long de ces années.

Elisabeth Dufour-Gergam, Professeur à l'université Paris-Sud, Jean-Marc Frigerio, professeur à l'Université Paris VI, Juan I. Larruquert de l'Instituto de Fisica Aplicada de Madrid, Michel Lequime, Professeur à Centrale Marseille, Bertrand Carre du CEA de Saclay, Eric Ziegler de l'ESRF et Pierre Chavel ont accepté de participer à mon jury d'habilitation. Je leur exprime toute ma gratitude pour leur travail et pour toutes les remarques constructives qu'ils ont apportées à mon manuscrit.

Un grand merci également à mes collègues de l'équipe Optique XUV pour leur travail et leur bonne humeur : Bruno Pardo, Françoise Varnière, Evgueni Meltchakov, Fadi Choueikani, Sébastien de Rossi, Charles Bourassin-Bouchet, Françoise Bridou, Arnaud Jérome et Ahmed Ziani, ainsi qu'à mes collègues du groupe SCOp. Les résultats que nous avons obtenus au cours de ces années n'existeraient pas sans le travail de nos collègues des services généraux de l'Institut d'Optique : l'atelier d'optique, l'atelier de mécanique, la centrale de technologie, le service infrastructure et les différents services administratifs. Qu'ils en soient ici remerciés.

Mes remerciements vont enfin à tous les collègues avec lesquels nous avons la chance de collaborer et qui proviennent d'autres laboratoires ou entreprises : le laboratoire de Chimie Physique – Matière et Rayonnement de Paris VI, le laboratoire d'Optique Appliquée de Palaiseau, le synchrotron Soleil, l'Institut d'Astrophysique Spatial d'Orsay, le CEA de Saclay, le CEA de Bruyères le Chatel, l'ISMO (ex-LIXAM) d'Orsay, le laboratoire des Matériaux Nanométriques d'Evry, la société XENOCS, la société SAGEM la Reosc et le CNES.

1 Introduction 7
2 Contexte général 9
2.1 Le domaine spectral XUV 9
2.2 Rappel historique 10
2.3 Contexte actuel : développement des sources et des applications 13
2.3.1 Les sources 13
2.3.2 Les applications 13
2.4 Miroirs multicouches XUV: état de l'art 17
3 Couches minces XUV : de la théorie à la pratique 21
3.1 Rappels théoriques 21
3.1.1 Propriétés optiques des matériaux dans l'XUV 21
3.1.2 Réflexion et transmission à une interface 23
3.1.3 Cas d'un empilement de N couches minces 24
3.2 Conception des empilements multicouches 26
3.3 Dépôt d'empilements de couches minces 29
3.3.1 Dépôt par pulvérisation ionique (bâti IBS) 30
3.3.2 Dépôt par pulvérisation cathodique magnétron (bâti MP800) 32
3.4 Caractérisation des couches minces et des multicouches 36
4 Bilan des travaux 39
4.1 Lames séparatrices 40
4.1.1 Objectif de l'étude 40
4.1.2 Caractérisation de la membrane et optimisation de la séparatrice 41
4.1.3 Résultats expérimentaux 42
4.2 Amélioration de la réflectivité des miroirs multicouches 43
4.2.1 Miroirs multicouches Cr/Sc pour la fenêtre de l'eau : 3 - 4 nm 44
4.2.2 Miroirs multicouches Sc/Si pour la gamme spectrale 40-50 nm 47
4.2.3 Miroirs multicouches à 3 matériaux par période : l'effet tri matériau 50
4.3 Etude de la stabilité des miroirs multicouches 55
4.3.1 Stabilité temporelle et couches de protection 55
4.3.2 Stabilité thermique et couches « barrières » 57
4.4 Miroirs à réponse spectrale spécifique 61
4.4.1 Quelques rappels sur les traitements antireflets 61
4.4.2 Réjection de la bande VUV 64
4.4.3 Réjection d'une raie dans la bande XUV 68
4.4.4 Miroirs bi bande à sélectivité paramétrable 70
4.5 Miroirs EUV large bande 72
4.5.1 Miroirs à structure bi périodique 72
4.5.2 Miroirs à structure apériodique 75
4.5.3 Transport et compression d'impulsions attosecondes 76
5 Conclusion et perspectives 79
6 Références 85
Annexe A : liste des équipements de dépôt de multicouches pour l'optique XUV 95
Annexe B : notations utilisées dans ce manuscrit 97
Annexe C : Curriculum Vitae 99
Annexe D : Principales publications 109

1 Introduction

Les propriétés optiques des matériaux dans le domaine XUV (1 nm à 60 nm) ont longtemps constitué un frein au développement d'optiques en incidence normale et restent aujourd'hui encore une limitation majeure. En effet, dans ce domaine spectral, l'absorption est présente dans tous les matériaux et les effets de réfraction et de réflexion sont faibles. Ainsi, pour une longueur d'onde λ de 7 nm, la réflectivité en incidence normale d'un simple miroir (*i.e.* une interface vide/matériau) est au mieux de l'ordre de 10^{-4}. Il est cependant possible d'améliorer cette réflectivité en additionnant en phase les amplitudes réfléchies à de nombreuses interfaces. Dans l'exemple précédent, l'amplitude réfléchie par une interface est de 10^{-2} : il suffirait donc de disposer de 100 interfaces en phase pour obtenir une réflectivité voisine de 1. Le calcul exact doit évidemment prendre en compte l'absorption et les interférences multiples. C'est cependant là le principe des miroirs interférentiels utilisés dans le visible et constitués d'un empilement de couches quart d'onde (*i.e.* d'épaisseur optique $\lambda/4$) alternant deux matériaux transparents, l'un de bas indice et l'autre de haut indice. Dans le domaine XUV, l'absorption des matériaux limite la pénétration du rayonnement incident dans l'empilement et réduit la réflectivité totale. Dans l'exemple précédent, la longueur d'absorption est de l'ordre de 70 nm, c'est-à-dire 10 λ : le rayonnement incident sur un empilement de type quart d'onde ne pourra "voir" qu'environ 40 interfaces.

En dépit de ces propriétés peu favorables à la réalisation d'optiques, le rayonnement XUV présente de nombreux intérêts. Grâce à lui, on pourra (et on peut déjà) écrire ou voir des motifs plus petits qu'en optique UV ou visible, sonder des milieux denses, analyser des processus atomiques et chimiques, accéder à des temps plus courts qu'avec le rayonnement visible, étudier les interactions à haute intensité…

Si la théorie des couches minces optiques est connue depuis fort longtemps, leur utilisation en optique XUV s'est longtemps heurtée à l'impossibilité de réaliser en pratique des empilements répondant aux critères requis dans ce domaine spectral. Les deux principales limitations étaient la qualité et la stabilité des interfaces d'une part et la précision et la reproductibilité des épaisseurs déposées d'autre part. Les progrès technologiques réalisés depuis les années 1970 ont permis de lever ces limitations et les premières applications des miroirs multicouches XUV ont pu voir le jour. La qualité des empilements réalisés n'a cessé de croître jusqu'à présent et ces progrès expérimentaux ont soulevé de nouveaux problèmes théoriques liés à l'optimisation de ce type d'empilements. Ainsi de nouvelles méthodes de

conception, spécifiques au domaine XUV, ont été proposées notamment par M. Yamamoto en 1992 [Yamamoto], puis en 2002 par J. Larruquert [Larruquert02].

Les recherches que j'ai menées depuis dix ans au sein de l'équipe Optique XUV du LCFIO s'inscrivent dans cette dynamique de développement rapide. D'un coté, les sources requièrent des optiques toujours plus performantes, d'un autre coté, les applications imposent de nouvelles contraintes sur la conception des empilements multicouches. Ces recherches sont centrées sur l'étude des matériaux en couches minces et des multicouches corrélée à l'étude des propriétés optiques des multicouches. L'objectif est d'aboutir, par une meilleure connaissance des phénomènes physiques dans ces empilements de couches nanométriques, à des composants multicouches et à des fonctions optiques jusqu'alors inaccessibles dans le domaine XUV.

Nous commencerons, dans le chapitre 2, par rappeler le contexte général de nos recherches. Après un bref historique, nous décrirons le contexte actuel de ces études puis l'état de l'art des miroirs multicouches XUV.

Nous présenterons, dans le chapitre 3, les "outils" théoriques et expérimentaux utilisés pour concevoir, réaliser et caractériser ces empilements multicouches. Dans un premier temps, nous ferons un rappel sur les propriétés optiques des matériaux dans l'XUV et sur le calcul théorique de la réflectivité d'un empilement. Nous décrirons ensuite une méthode de conception de miroirs multicouches XUV. Enfin, nous nous intéresserons aux méthodes de dépôts et de caractérisation de ces empilements.

Le chapitre 4 sera consacré à la description des travaux effectués et des principaux résultats obtenus. Nous commencerons par l'étude d'optiques multicouches XUV en transmission avec le développement de lames séparatrices pour l'interférométrie. Nous décrirons ensuite plusieurs exemples d'empilements multicouches développés au laboratoire et qui nous ont permis d'améliorer notablement la réflectivité dans certaines plages spectrales. Le problème de la stabilité des miroirs multicouches sera exposé. Nous montrerons notamment l'influence des couches de protection et des couches "barrières" sur la stabilité temporelle et thermique de ces empilements. Pour terminer, nous nous intéresserons au développement de miroirs possédant des propriétés spectrales spécifiques : miroirs avec traitement antireflet, miroirs à double bande passante et miroirs à large bande passante.

Enfin, dans le chapitre 5, nous conclurons et donnerons les principales perspectives de ce travail.

2 Contexte général

2.1 Le domaine spectral XUV

Historiquement, les rayons X n'ont pas été définis par des limites spectrales précises mais par le phénomène physique qui permet de les générer : il s'agit du rayonnement électromagnétique produit lors d'une transition d'un électron d'une orbite atomique vers une orbite interne vacante. Cela explique sans doute pourquoi les limites de ce domaine spectral varient selon les auteurs. Comme le montre le tableau 1, à l'intérieur même de ce domaine, la subdivision en rayons X durs et X mous n'est elle-même pas unique. Il existe également une dispersion très importante des valeurs fixant la limite entre les rayons X mous et l'extrême ultraviolet (EUV).

Le rayonnement ultraviolet, quant à lui, est défini par la limite de perception de l'œil humain (vers 400 nm): c'est le rayonnement électromagnétique de longueur d'onde inférieure au violet. En diminuant encore la longueur d'onde, on atteint la limite de propagation du rayonnement dans l'air (à 200 nm). On entre alors dans le domaine des ultraviolets du vide (VUV : Vacuum Ultra Violet). Malheureusement, aucun phénomène physique ne délimite précisément le domaine extrême UV (EUV). Ainsi, chaque auteur, suivant sa communauté scientifique d'origine, utilise des valeurs sensiblement différentes et généralement arbitraires (voir tableau 1).

Tableau 1 : Définition des domaines du spectre électromagnétique selon différentes sources.

Rayons X			Source
X durs	X mous	EUV	
0.01 nm – 0.1 nm	0.1 nm – 23 nm		[Jenkins]
	0.3 nm – 5 nm	5 nm – 40 nm	[Attwood]
0.012 nm – 0.41 nm	0.41 nm – 12.4 nm	12.4 nm – 82.7 nm	[Barbee90]
	1 nm – 50 nm		[Spiller94]
0.001 nm – 0.1 nm	0.1 nm – 10 nm	10 nm – 121 nm	[ISO 21348]
0.025 nm – 0.25 nm	0.25 nm – 10 nm	10 nm – 90 nm	[NASA]
0.01 nm – 0.25 nm	0.25 nm – 10 nm	10 nm – 100 nm	[ESA]

Le domaine d'utilisation des miroirs multicouches en incidence quasi-normale couvre en réalité une partie des rayons X mous et de l'EUV. Pour « simplifier », nous l'appellerons le domaine XUV et nous considérerons qu'il s'étend approximativement de 1 nm à 60 nm.[1] Notons que cette « définition » se rapproche de celle qu'utilise E. Spiller pour ses « soft x-rays » (tableau 1). Nous avons étendu le domaine du coté des grandes longueurs d'onde du

[1] Signalons que l'on rencontre aussi depuis quelques années dans la littérature la dénomination XUV pour « eXtreme UV ».

fait des progrès réalisés récemment sur les miroirs multicouches. La figure suivante récapitule les définitions des différentes gammes spectrales que nous utiliserons dans ce manuscrit (fig. 1).

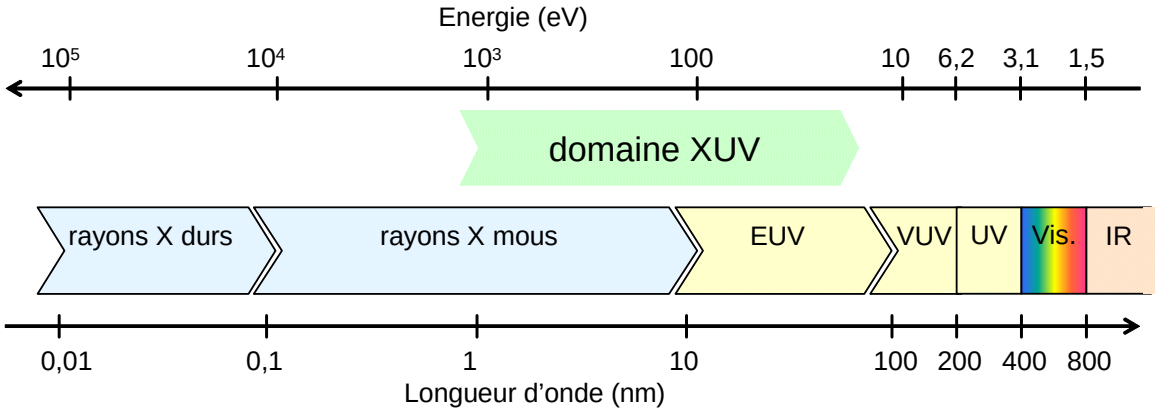


Figure 1 : Représentation du spectre électromagnétique autour du domaine XUV

2.2 Rappel historique

Les premières études d'empilements multicouches avec des rayons X remontent aux années 1930 [Debner], peu après la découverte du phénomène de diffraction des rayons X par les cristaux naturels. A l'époque, le principal intérêt de ces multicouches, appelées « cristaux artificiels », était d'étendre le domaine d'étude des rayons X vers les grandes longueurs d'onde. La première multicouche XUV est attribuée à Dumond et Youtz[Dumond] qui, en 1935, ont réalisé et caractérisé un empilement or/cuivre. Cependant, l'idée d'utiliser de tels empilements en incidence normale pour réfléchir efficacement le rayonnement XUV n'est apparue qu'en 1972 dans un article d'Eberhard Spiller.[Spiller72]

Dans les années 70 et 80, l'étude des miroirs multicouches XUV a d'abord été motivée par les applications sur rayonnement synchrotron telles que la microscopie X[Spiller76, Kirz85, Underwood86] et par le développement des lasers X. Rapidement, l'intérêt de ces nouvelles optiques XUV pour l'astrophysique et l'imagerie des plasmas denses est apparu.[Keski-Kuha85, Underwood81, Lowenthal] Le premier télescope XUV à incidence normale a été envoyé en 1985 dans une fusée sonde et a permis de réaliser les premières images du soleil à 4.4 nm de longueur d'onde.[Underwood87]

Jusqu'à cette époque, si la théorie était déjà bien comprise, les défauts présents dans les structures réalisées ne permettaient pas d'atteindre des réflectivités supérieures à 10%. C'est alors, en 1985, que Troy W. Barbee Jr publie pour la première fois des réflectivités expérimentales supérieures à 50% autour de 17 nm.[Barbee85] Dans cette article, T. Barbee écrivait: "*The high reflectivities of these molybdenum-silicon structures will make possible*

application of traditional optics approaches in the EUV and support new developments including free electron lasers." Les quelques vingt cinq années qui se sont écoulées depuis lui ont largement donné raison et ont permis de valider sa prédiction.

En effet, la recherche sur les optiques XUV, et notamment sur les miroirs multicouches, a connu une formidable accélération à la fin des années 80 avec le développement de la lithographie EUV.[Kinoshita05, Wu] Le concept et l'architecture d'un système de lithographie EUV[2] a été proposé en 1988 au Lawrence Livermore National Laboratories[Hawryluke] et la première démonstration expérimentale a eu lieu l'année suivante au Japon dans les laboratoires de NTT.[Kinoshita89] Dans les années 90, le nombre d'équipes travaillant sur cette thématique a considérablement augmenté pour faire face aux nombreux défis posés par la lithographie EUV. Les progrès réalisés ont eu des répercussions également dans les autres domaines de l'optique XUV : astrophysique, microscopie X, diagnostics de plasmas denses… Cela s'est traduit notamment par une impressionnante augmentation du nombre de publications d'articles dans le domaine de l'optique XUV à partir de 1989, comme le montre la figure 2.

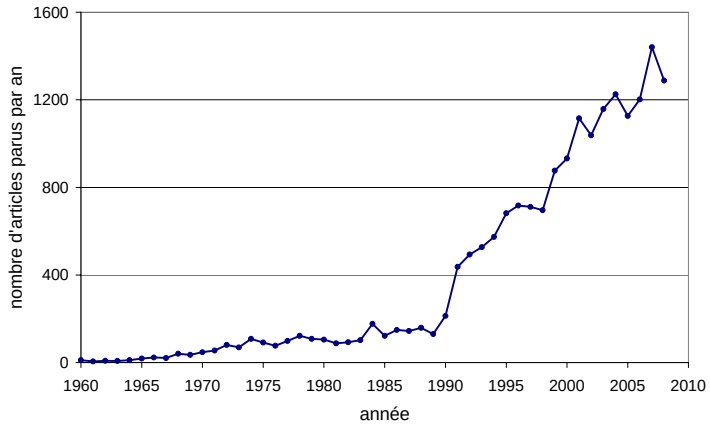


Figure 2 : Evolution du nombre d'articles parus avec dans le sujet « EUV », « XUV » ou « soft x-ray » en fonction de l'année de parution (d'après ISI Web of Knowledge).

Dans ce contexte international de forte croissance des domaines d'applications des miroirs multicouches XUV, le laboratoire Charles Fabry de Institut d'Optique (LCFIO) a fait partie des laboratoires pionniers. Les premières études par rayons X de couches minces métalliques réalisées au laboratoire remontent au début des années 1960.[Croce64] A la fin des années 60, un goniomètre à rayon X en incidence rasante piloté par ordinateur avait déjà été conçu et installé au laboratoire.[Devant] Dès 1970, P. Croce et B. Pardo ont publié un article sur

[2] On l'appelait à l'époque "soft x-ray projection lithography". La dénomination EUVL a été adoptée à partir de 1993 suite aux conférences internationales sur le sujet organisée par l' Optical Society of America en 1993 qui avaient pour titre : " Topical Meeting of Extreme Ultraviolet Lithography".

l'application des couches interférentielles à l'optique des rayons X et des neutrons.[Croce70] Ils y présentent notamment les résultats de la modélisation et de la caractérisation d'un empilement de deux couches minces réalisé au laboratoire : 10 nm de nickel et 20 nm d'aluminium déposés sur une lame de verre polie. Dans les années 70, les recherches menées au LCFIO dans ce domaine se sont intensifiées suivant deux axes : le développement de la réflectométrie des rayons X rasants et de la théorie associée d'une part,[Croce72] et la réalisation et l'étude d'empilements de couches minces métalliques d'autre part.[Chauvineau74] Ces études ont notamment abouti à la publication en 1980, d'un article qui fait aujourd'hui référence sur la modélisation de la rugosité d'interface en réflectométrie X.[Nevot80] Au début des années 80, un bâti d'évaporation avec contrôle in situ des épaisseurs déposées par réflectométrie X est conçu et installé au laboratoire,[Chauvineau83] suivant la méthode de Spiller.[Spiller81] Les premiers résultats expérimentaux incluant des mesures de réflectivité des multicouches métalliques produites datent de 1983.[Chauvineau84, Naccache] Le développement de cette thématique s'est poursuivie jusqu'à aujourd'hui avec notamment la mise en place en 1990 d'un bâti de pulvérisation par faisceau d'ions puis l'installation d'un bâti de pulvérisation cathodique magnétron en 2002.

Tableau 2 : petit historique des rayons XUV au LCFIO

Années		Références
1969	Premier goniomètre X piloté par ordinateur	[Devant]
1970	Article "sur l'application des couches interférentielles à l'optique des rayons X"	[Croce70]
1972	Etude des couches minces par réflectométrie X	[Croce72]
1974	Réalisation d'empilements de couches minces métalliques Au/Cu/Au	[Chauvineau74]
1980	Formalisme pour modéliser la rugosité d'interface en réflectométrie X	[Nevot80]
1980-83	Installation d'un bâti d'évaporation avec contrôle in situ des épaisseurs	[Chauvineau83, Chauvineau84]
1985	Création d'une Opération "Optique X" regroupant trois groupes du laboratoire : Physique des Couches Minces, Surfaces et Composants Optiques et Physique des Images	Rapport d'activité scientifique du LCFIO (1989)
1988	Développement d'un formalisme matriciel pour le calcul de la réflectivité	[Pardo88]
1990-91	Réalisation et traitement des miroirs du télescope EUV pour la mission d'observation solaire SOHO	[Chauvineau92, Delaboudinière]
1998	Installation d'une salle blanche de classe 1000 pour la préparation et le traitement des miroirs multicouches	
1999	Création du Pôle d'Optique des Rayons X d'Orsay (PRaXO), initiation du projet CEMOX[3]	
2002	Installation d'un bâti de pulvérisation cathodique magnétron dans le cadre de CEMOX	
2002-03	Réalisation et traitement des miroirs des télescopes EUV pour la mission d'observation du soleil en 3D STEREO	[Ravet, Wuelser, Howard]
2007	Record mondial de résolution obtenu sur le synchrotron SOLEIL avec un spectromètre VUV à TF conçu et réalisé au LCFIO.	[Joyeux09, De Oliveira]

[3] La Centrale d'élaboration et de métrologie d'optiques X est une plateforme de deux équipements partagés entre le LCFIO et le LIXAM.

2.3 Contexte actuel : développement des sources et des applications

L'intérêt croissant pour les miroirs multicouches XUV se justifie par le développement des sources et des applications dans ce domaine spectral.

2.3.1 Les sources

La première source de rayonnement synchrotron (rayonnement émis par des électrons qui tournent dans un anneau de stockage avec des énergies de l'ordre du giga électronvolt) est apparue dans les années 1960. Depuis les technologies liées à ces sources et le nombre d'installations n'ont cessé de progresser en Europe et dans le reste du monde. Il existe aujourd'hui environ 70 installations à travers le monde[4]. Trois générations de sources synchrotron à anneaux de stockage se sont succédées et aujourd'hui les lasers à électrons libres constituent la quatrième génération. Ce rapide développement a été accompagné et favorisé par l'apparition d'une communauté d'utilisateurs de plus en plus nombreux et provenant de disciplines variées : physique du solide, matériaux, chimie, archéologie, sciences de la terre, science de la vie, etc.…

En parallèle avec ce formidable développement, d'autres sources ont vu le jour et ont également connu un développement rapide : les sources à génération d'harmoniques d'ordre élevé d'une part et les lasers X d'autre part. Ces deux types de source ont en commun de générer du rayonnement XUV par interaction entre un laser IR intense et un matériau à l'état solide ou gazeux. Même si elles ne sont pas encore parvenues au même niveau de maturité que les sources synchrotrons, elles ouvrent de nouvelles perspectives de recherches et d'applications du fait de leurs propriétés spécifiques : brillance, cohérence, durée d'impulsion… Des lignes de lumière ouvertes aux utilisateurs extérieurs sont d'ores et déjà en activité et les premières installations entièrement dédiées aux utilisateurs, telles que la station LaseriX, voient le jour. En France, la communauté d'utilisateurs commence à se fédérer autour des nouvelles applications rendues possibles par ces sources.[5]

2.3.2 Les applications

Les miroirs multicouches XUV ont grandement contribué au développement et à l'amélioration de nombreuses applications dans des domaines variés : astrophysique solaire, industrie du semiconducteur, fusion par laser...

[4] Une liste mise à jour est consultable sur http://www.lightsources.org/
[5] C'est un des objectifs du Groupement de Recherche « AppliX » créé en 2008 par le CNRS.

Le développement de **télescopes EUV pour l'imagerie solaire** a connu un grand succès au travers de plusieurs missions : SOHO en 1995, TRACE en 1998 et STEREO en 2006. L'utilisation de miroirs multicouches en incidence normale a permis d'améliorer la résolution des images d'environ un ordre de grandeur par rapport aux télescopes en incidence rasante précédents. La meilleure résolution obtenue, de l'ordre de 0.5" sur TRACE, n'est en fait pas limitée par la qualité de l'optique mais par les détecteurs, la stabilité du pointé et/ou le flux de photons disponibles.[Golub, Walker] Ces résultats et l'expérience accumulée permettent aujourd'hui d'envisager des missions avec des spécifications plus contraignantes sur les optiques multicouches. Par exemple, la mission Solar Orbiter de l'ESA prévoit d'envoyer en 2017 un satellite équipé de plusieurs télescopes EUV à seulement 0.2 unité astronomique du soleil. D'autres applications en astrophysique, telles que l'observation et la spectroscopie en XUV d'étoiles lointaines sont également envisagées.[Barstow]

La **lithographie EUV à 13.5 nm** est basée sur la technologie de miroirs multicouches Mo/Si en réflexion. L'objectif est de réduire la longueur d'insolation (actuellement 193 nm) afin de permettre l'écriture de motifs plus petits. Les systèmes d'insolation EUV comportant au minimum 9 optiques multicouches en réflexion, le choix de la longueur d'onde de travail à été dicté par les performances des multicouches : proche du seuil Lα du silicium (12.4 nm) les multicouches Mo/Si réfléchissent jusqu'à 70% du rayonnement. Même si des progrès ont été réalisés à d'autres longueurs d'onde, ce "record" de réflectivité reste, aujourd'hui encore, un point singulier dans le spectre XUV[6]. Depuis les années 90, de nombreuses études ont été menées au USA, en Europe et au Japon au travers de programmes thématiques et de consortiums industriels. D'importants progrès technologiques ont ainsi été réalisés sur les empilements multicouches afin de s'approcher au maximum de la réflectivité théorique et de garantir la stabilité et l'uniformité requise sur des optiques allant jusqu'à 400 mm de diamètre.
Le premier démonstrateur EUVL, prototype d'un système de lithographie EUV nommé "engineering test stand" (ETS) a été installé au Sandia National Laboratories en California en 2001.[Chapman01, Kinoshita05] Il s'agissait d'une demonstration de faisabilité mais avec des performances assez éloignées des spécifications requises pour l'entrée en production (notamment en termes de rendement). En 2006, deux systèmes d'insolation EUV plein champ fabriqués par ASML et nommés "Alpha Demo Tools" ont été installés, l'un à l'IMEC (Louvain, Belgique) et l'autre à SEMATECH (New York, USA).[Wu] Une résolution de 28 nm "half pitch" a été démontrée en 2009.[Meiling] Aujourd'hui, aucun point bloquant n'a été

[6] Des multicouches Mo/Be présentant des réflectivités de l'ordre de 70% vers 11nm ont également été étudiées dans les anneés 90 mais le silicium (moins toxique) a finalement été préféré au béryllium.

identifié, mais des progrès importants doivent encore être réalisés sur de nombreux aspects de la technologie afin d'atteindre les spécifications requises pour la production de masse : puissance de sources, qualité des masques "zéro défaut" et des résines, qualité et durée de vie des optiques multicouches...

L'analyse par fluorescence X (XRF[7]) **ou par microsonde électonique** (EPMA[8]) des éléments "légers" (de numéro atomique Z compris entre 4 et 9) présente un intérêt particulier dans l'industrie du semiconducteur pour le contrôle du dopage ou l'analyse d'impuretés. Pour les éléments plus lourds, les cristaux naturels sont généralement utilisés comme monochromateurs afin d'analyser le rayonnement émis par l'échantillon. Pour les éléments légers, la longueur d'onde du rayonnement à analyser augmente (typiquement entre 2.3 et 6.9 nm) et on est obligé d'avoir recours à des "cristaux artificiels", c'est à dire des empilements multicouches. Le cristal monochromateur ayant également comme fonction de focaliser la faisceau sélectionné sur le détecteur, ces empilements multicouches doivent être déposés sur des optiques courbes. La sélectivité du monochromateur étant un facteur determinant pour la résolution de l'appareil, il est nécessaire d'adapter la période de l'empilement à l'angle d'incidence en tout point de l'optique (dépôts à gradient latéral d'épaisseur). Le développement de miroirs multicouches pour ce type d'applications a fait l'objet du travail de thèse d'Aurélie Hardouin dans le cadre d'une collaboration avec la société XENOCS.[Hardouin07] Afin d'améliorer la résolution et de diminuer le bruit de fond, J.M. André et col. ont proposés en 1993 d'utiliser des multicouches gravées (en forme de réseau). Le principal effet recherché est de diminuer l'absorption moyenne dans la structure et ainsi d'augmenter le nombre d'interfaces participant à la réflexion. Ce concept a été validé expérimentalement quelques années plus tard avec de multicouches Mo/Si pour des énergies voisines de 100 eV et de 1500 eV en utilisant des procédés classiques de microtechnologies (photolithographie UV et gravure ionique réactive).[Benbalagh, Andre02]

L'utilisation de rayonnement X ou XUV est indispensable pour caractériser optiquement les plasmas denses car ces derniers sont opaques à la lumière visible ou UV. Les **diagnostics de plasmas denses** peuvent être des imageurs, des interféromètres ou des interféromètres imageurs. Dans le domaine EUV, les imageurs multicouches permettent de caractériser l'émission des sources laser X.[Kazamias] Le domaine des imageurs X en incidence rasante a également bénéficié du développement des miroirs multicouches. En effet, à plus haute énergie (typiquement quelques keV), l'utilisation d'empilements multicouches permet

[7] X-ray Fluorescence
[8] Electron Probe Micro Analysis

d'augmenter l'angle de rasance et ainsi d'améliorer les performances optiques des imageurs. Il est intéressant de noter que les multicouches utilisées pour ce type d'application sont souvent constituées de matériaux semblables à ceux utilisés en XUV avec des épaisseurs similaires (la faible longueur d'onde étant compensé par l'incidence rasante).[Bridou02] Des expériences d'interférométrie EUV ont également été réalisées pour caractériser des plasmas denses. Un interféromètre à division d'amplitude de type Mach Zender, basé sur l'utilisation de lames séparatrices XUV, a été testé en 1995 par Da Silva et col.[Da Silva] Dans le paragraphe 4.2, nous décrirons le développement de lames séparatrices multicouches spécifiques pour l'interférométrie de Michelson.[Delmotte] En 2002, des expériences d'interférométrie utilisant ces optiques multicouches en transmission ont permis de caractériser la cohérence spatiale des sources laser X.[Smith] Les applications de ces montages interférométriques restent cependant limitées à cause du fort chromatisme des lames séparatrices. L'interférométrie à division de front d'onde développée notamment par D. Joyeux et col. permet de contourner ce problème et de concevoir des interféromètres fonctionnant sur de larges gammes spectrales.[Polack95] Par ailleurs, des interféromètres imageurs ont également été conçus et réalisés à l'Institut d'Optique ces dernières années pour la mesure des profils de densité électronique dans des plasmas denses en utilisant une source laser X à 13.9 nm[Tang] ou une source à génération d'harmoniques à 32 nm.[Dobosz] Ces diagnostics combinent un interféromètre à division de front d'onde (du type bimiroir de Fresnel) avec un système d'imagerie multicouche. En 2008, S. De Rossi et col. ont montré que l'interférométrie XUV pouvait également être utilisée pour sonder des empilements multicouches.[De Rossi08]

La génération d'**impulsions ultra-brèves** à l'échelle de temps **attoseconde** (10^{-18} s) ouvre le vaste champ d'exploration des phénomènes à dynamique ultrarapide. Par exemple, la caractérisation des mouvements des électrons à l'intérieur et entre les atomes à l'échelle des temps attosecondes permettra de comprendre et de mieux maitriser divers processus fondamentaux dans les atomes et les molécules. Ces impulsions, créées par des sources à génération d'harmoniques, engendrent un certain nombre de défis technologiques et scientifiques, notamment pour les optiques de transport et de focalisation. Le record actuel de durée d'impulsion (80 as) a été obtenu en 2008 en utilisant un miroir multicouche à large bande passante.[Goulielmakis] Nous présenterons dans la partie 4.6, les résultats des recherches que nous menons sur cette thématique.

Notons pour finir que l'utilisation des optiques multicouches pour les expériences sur **laser à électrons libre X** (XFEL[9]) s'intensifie depuis que ces derniers sont passés sous la barre des 60 nm de longueur d'onde. Ces expériences utilisent généralement un très haut flux de photons XUV ce qui soulève de nouveaux problèmes concernant la tenue au flux des optiques. Récemment, la focalisation submicronique d'un rayonnement XFEL à 92 eV sur une cible d'aluminium a été obtenue à l'aide d'une parabole hors axe revêtue d'une multicouche Mo/Si[Bajt09] et a permis pour la première fois de rendre l'aluminium transparent à cette longueur d'onde.[Nagler] Ce type d'expérience présente un intérêt tout particulier pour **l'étude de la matière dense et tiède** (WDM[10]).

2.4 Miroirs multicouches XUV: état de l'art

Les miroirs multicouches XUV constituent la seule possibilité d'obtenir des réflectivités en incidence normale utilisables dans les applications. Aujourd'hui, des réflectivités expérimentales supérieures à 10% ont été rapportées sur la quasi totalité du domaine spectral XUV. On peut cependant distinguer plusieurs régions, généralement délimitées par des seuils d'absorption des matériaux que l'on va utiliser comme espaceur ("spacer") dans les empilements multicouches.

1 nm < λ < 2,2 nm

En dessous du seuil Kα de l'oxygène, l'influence des rugosités d'interface sur la réflectivité devient drastique et la valeur même de l'épaisseur des couches approche la limite atomique. Des multicouches W/B_4C de période 1,12 nm et 0,8 nm ont été réalisées par D. Windt et col. en 2002. Ils ont mesuré une réflectivité de 1% à 2,2 nm et 0,1% à 1,6 nm respectivement pour ces deux empilements sous une incidence de 2,5°.[Windt02]

2,2 nm < λ < 4,4 nm

La fenêtre de l'eau, délimitée par les seuils Kα de l'oxygène et du carbone, présente un intérêt particulier pour la microscopie X et l'imagerie biologique car l'eau y est presque transparente et les cellules très absorbantes. Les réflectivités mesurées dans ce domaine sont restées pendant longtemps en dessous de 10%. Depuis une dizaine d'années, le développement des multicouches Cr/Sc a permis d'atteindre des réflectivités supérieures à 10% pour les longueurs d'onde supérieures à 3,1 nm.

[9] X-ray Free Electron Laser
[10] Warm Dense Matter

Pour la microscopie X, une alternative aux miroirs multicouches est l'utilisation d'optiques diffractives : les lentilles de Fresnel. Une résolution de 15 nm a été démontrée par cette technique en 2005.[Chao]

4,4 nm < λ < 6,7 nm

Plusieurs structures multicouches à base de carbone ont été étudiées et développées pour cette gamme spectrale : W/C, Ni/C, Cr/C, Co/C… Les multicouches Co/C ont notamment permis d'atteindre une réflectivité de 14,8% à 4,58 nm sous une incidence de 5°.[Artyukov] Ces empilements deviennent cependant moins performants lorsque l'on s'éloigne du seuil du carbone et aucune réflectivité supérieure à 10% n'a été publiée à ce jour dans la gamme 5 nm à 6,5 nm.

6,7 nm < λ < 12,4 nm

Au-delà du seuil du Bore (6,7 nm) le carbure de bore, plus stable que le bore, est un matériau de choix pour réaliser des miroirs multicouches performants. Les miroirs La/B_4C présentent les meilleures performances pour les longueurs d'onde voisines de ce seuil[Andre05] mais des multicouches Mo/B_4C avec des réflectivités de l'ordre de 10% sont aussi utilisées. Au delà de 7 nm, d'autres empilements ont été développés. Des empilements Mo/Y et Mo/Sr ont permis d'atteindre des réflectivités de 20% à 40% dans la gamme 8 – 11 nm.[Montcalm95, Sae-Lao]

Au-delà de 11 nm, les multicouches Mo/Be développées dans un premier temps pour la lithographie EUV présentent des réflectivités de l'ordre de 70%.[Montcalm98]

12,4 nm < λ < 40 nm

La gamme spectrale qui s'étend au-delà du seuil Lα du silicium a longtemps été le règne des multicouches Mo/Si. Cela reste vrai aujourd'hui pour la région proche du seuil (typiquement 12,4 à 17 nm) dans laquelle leur réflectivité varie de 70% à environ 40%.

Au-delà, des études récentes ont permis de dépasser les performances de Mo/Si. Nous présenterons notamment au chapitre 4 les résultats obtenus avec des empilements à trois matériaux par période dans cette gamme spectrale. Des multicouches à base de magnésium ont également été développées au Japon et au USA avec des réflectivités de l'ordre de 40% à 30 nm.[Takenaka05]

<u>40 nm < λ < 60 nm</u>

Cette gamme spectrale n'a été accessible aux miroirs multicouches qu'avec le développement des multicouches Sc/Si par Uspenskii et col.[Uspenskii97, Uspenskii00] Nous parlerons plus en détail de ces multicouches au paragraphe 4.3.2.

Enfin, le récent développement de multicouches Si/Gd a fait progresser les miroirs multicouches au-delà de 60 nm. Une réflectivité de 29,7% a été mesurée avec ce type d'empilement pour une longueur d'onde de 62,5 nm.[Windt09]

3 Couches minces XUV : de la théorie à la pratique

Après quelques rappels théoriques, nous présenterons les outils qui permettent de concevoir et de comprendre le fonctionnement des empilements multicouches dans le domaine XUV. Nous décrirons ensuite les méthodes de dépôt et de caractérisation utilisées pour étudier expérimentalement ces structures multicouches.

3.1 Rappels théoriques

Le calcul général de la réflectivité et de la transmission d'un empilement multicouche est détaillé dans de nombreux ouvrages (voir par exemple [Born] ou [Macleod]). Plusieurs approches ont été proposées pour calculer la réflectivité d'un empilement de couches minces. Parmi les plus utilisées, on trouve la méthode matricielle et la méthode récursive. La méthode matricielle, basée sur le formalisme introduit par Abélès en 1950,[Abeles] a été présentée en détail par B. Pardo et col. en 1988.[Pardo88] Elle présente l'intérêt de réduire les temps de calcul si l'on calcule des empilements périodiques avec un nombre de périodes élevé. Elle s'avère utile pour avoir rapidement une estimation des réflectivités, par exemple pour rechercher les meilleurs matériaux pour une application donnée parmi tout le tableau périodique.[Bajt08]

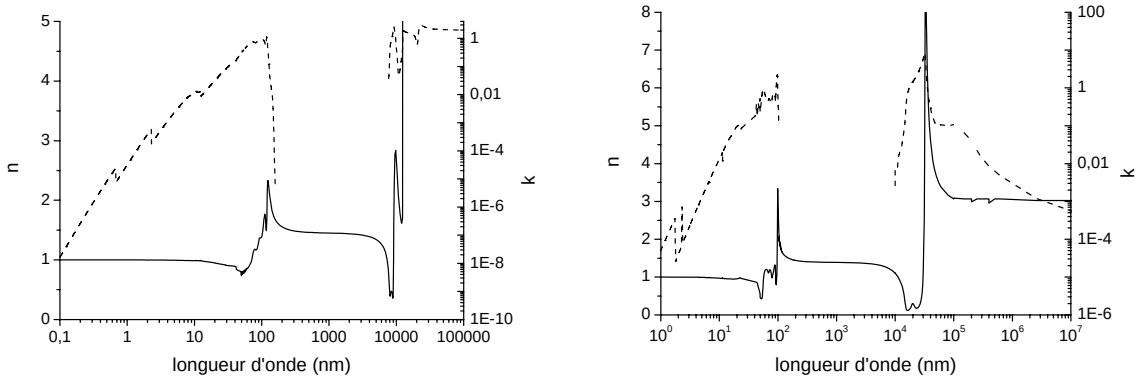
Cependant, le nombre de couches des empilements dans le domaine spectral 10-50 nm est limité (généralement entre 15 et 100), et la structure de la multicouche est rarement parfaitement périodique (présence de couches de protection, oxydation de la surface,…). Nous avons développé notre propre code de simulation et d'optimisation[Gautier05c] des empilements multicouches XUV et nous utilisons également le logiciel IMD.[Windt98] Tous deux sont basés sur la méthode récursive.

L'objectif de ce paragraphe n'est pas de décrire de façon exhaustive la théorie mais simplement d'introduire un certain nombre de grandeurs physiques et de notions qui nous serons utiles par la suite. Nous nous limiterons pour cela au cas de la réflexion d'une onde par un empilement multicouche en incidence normale. Après une brève description des propriétés optiques des matériaux dans le domaine XUV, nous rappellerons les expressions des coefficients de Fresnel à une interface puis le calcul de la réflectivité d'un empilement de couches minces.

3.1.1 Propriétés optiques des matériaux dans l'XUV

Une des particularités du domaine spectral XUV que nous avons déjà mentionnée en introduction réside dans l'absence de matériaux transparents : en dessous de 100 nm de longueur d'onde tous les matériaux deviennent absorbants. La figure 3 montre l'évolution de

l'indice de réfraction n et du coefficient d'absorption k pour deux matériaux diélectriques (*i.e.* transparent dans le visible) : la silice (a-SiO2) qui est le matériau le plus courant en optique et le fluorure de lithium (LiF) dont la fenêtre de transparence descend jusqu'à 100 nm. L'indice n est tracé en trait plein et en échelle linéaire alors que le coefficient d'absorption k est tracé en échelle logarithmique (trait pointillé). L'évolution de l'indice optique avec la longueur d'onde fait apparaître différents régimes d'interaction du rayonnement avec la matière. Dans l'IR, on trouve des résonances liées aux transitions entre niveaux moléculaires. Si l'on diminue leur longueur d'onde, les photons n'interagissent plus avec les molécules mais avec les atomes : les résonances caractéristiques de ces interactions sont présentes dans l'UV. Au passage de chacune de ces zones de résonance dans le sens des longueurs d'onde décroissantes, on constate que l'indice de réfraction n se rapproche de l'unité : le rayonnement interagit de moins en moins avec la matière. Aux plus basses longueurs d'onde, les photons interagissent uniquement avec les électrons présents dans la matière : les seuils d'absorption dans le domaine X et EUV sur les tracés de k rendent compte de ces interactions.



(a) *(b)*

Figure 3 : Indice optique de a-SiO_2 (a) et LiF (b) en fonction de la longueur d'onde. n est représenté en trait plein et k en trait pointillé.

Deux autres particularités du domaine XUV sont visibles sur la figure 3 : l'indice de réfraction est très voisin de 1 et le coefficient d'absorption diminue lorsque la longueur d'onde diminue (à l'exception des seuils d'absorption). Pour les longueurs d'onde inférieures à environ 40 nm, les propriétés optiques des matériaux peuvent être décrites par les facteurs de diffusion atomique. Pour un matériau monoatomique, l'indice complexe ñ est relié aux facteur de diffusion de l'atome par l'équation 3.1.[SPILLER94]

$$\tilde{n} = n - i\,k = 1 - \frac{r_0 \lambda^2}{2\pi} N_{at}\left(f_1 + i\,f_2\right) \qquad (3.1)$$

où f_1 et f_2 sont respectivement les parties réelle et imaginaire du facteur de diffusion atomique, r_0 le rayon classique de l'électron[11], et N_{at} le nombre d'atomes par unité de volume. La partie réelle f_1 représente approximativement le nombre d'électrons "libres" par atome, c'est-à-dire le nombre d'électrons ayant une énergie de liaison inférieure à l'énergie des photons. La partie imaginaire f_2 est reliée à la section efficace de photoabsorption de l'atome. Des tables de facteurs de diffusion atomique ont été publiées en 1993 par Henke et col.[Henke] pour tous les éléments du tableau périodique (de numéro atomique inférieur ou égal à 92) et pour des énergies comprises entre 50 eV et 30 keV (0,04 nm < λ < 25 nm). Ces tables ont été obtenues à partir d'une compilation des données expérimentales de photoabsorption publiées à l'époque et d'interpolations à l'aide de modèles théoriques pour les éléments manquants. La partie imaginaire f_2 est déduite directement des valeurs de photoabsorption. La partie réelle f_1 est calculée à partir des valeurs de f_2 en utilisant la relation de dispersion de Kramers-Kronig.[Spiller94] Malheureusement, cette méthode ne permet pas de calculer précisément les indices optiques près des seuils d'absorption des matériaux car elle ne prend pas en compte l'environnement chimique des atomes.

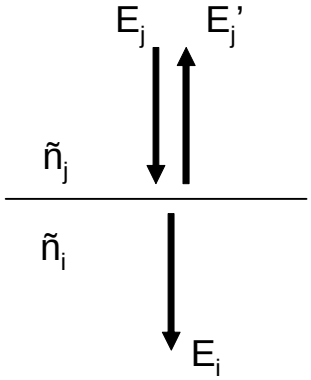
Il faut souligner que tous les calculs théoriques et outils de conception présentés dans la suite du chapitre nécessitent une connaissance précise des indices optiques des matériaux en couches minces utilisés dans les empilements. Des progrès importants ont été réalisés ces dernières années pour déterminer avec une plus grande précision ces indices optiques, notamment par interférométrie EUV,[Joyeux99, Chang] et les tables d'indices établies à partir des facteurs de diffusion atomiques publiés par Henke sont mises à jour régulièrement sur le site Internet du CXRO[12] et ont été étendues jusqu'à 41 nm.[CXRO] Nous avons également démarré au laboratoire, un programme de mesure directe de l'indice de réfraction par interférométrie XUV.[De Rossi06] Les résultats attendus nous permettront, à terme, de connaître les indices des couches minces déposées au laboratoire et ainsi de gagner en précision pour l'optimisation et la simulation des empilements.

3.1.2 Réflexion et transmission à une interface

On considère une onde électromagnétique plane rencontrant une interface parfaite entre deux milieux d'indices complexes $\tilde{n}_i$ et $\tilde{n}_j$ (figure 4). On appelle E_j le champ électrique de l'onde incidente, E_j' celui de l'onde réfléchie et E_i celui de l'onde transmise. Les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude du champ électrique (respectivement $r_{j,i}$ et $t_{j,i}$),

[11] $r_0 = 2.82\times10^{-15}$ m
[12] Center for X-Ray Optics, Berkley, USA

encore appelés coefficients de Fresnel, peuvent être calculés en utilisant les relations de continuité des champs électrique et magnétique à l'interface. Dans le cas d'une incidence normale, on obtient les relations 3.2 et 3.3.



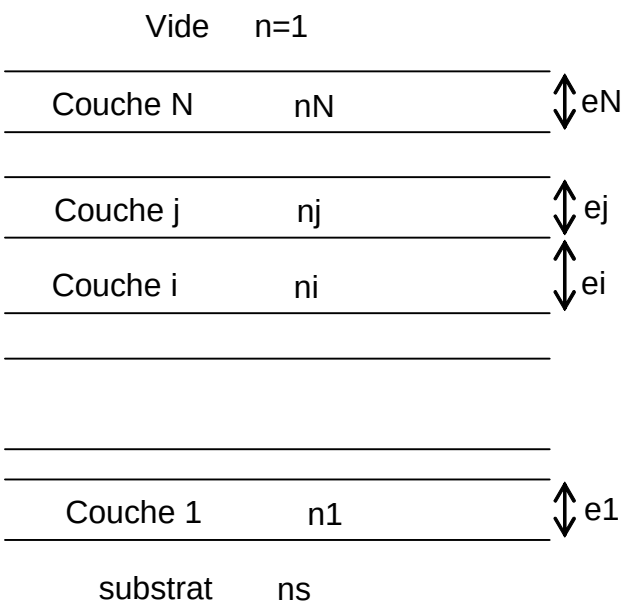
$$\frac{|E_j'|}{|E_j|} = \frac{\tilde{n}_j - \tilde{n}_i}{\tilde{n}_j + \tilde{n}_i} \equiv r_{j,i} \qquad (3.2)$$

$$\frac{|E_i|}{|E_j|} = \frac{2\tilde{n}_j}{\tilde{n}_j + \tilde{n}_i} \equiv t_{j,i} \qquad (3.3)$$

Figure 4 : Schéma des champs électriques à l'interface j/i

3.1.3 Cas d'un empilement de N couches minces

Le coefficient de réflexion en amplitude d'un empilement peut être obtenu par un processus itératif en ajoutant les couches une à une sur le substrat. Nous considérons ici un empilement de N couches minces et nous noterons i et j deux couches successives. Sur la figure 5, la lumière arrive par le haut et pénètre d'abord dans la couche N. L'équation 3.4 permet de calculer l'amplitude réfléchie en supposant que l'empilement s'arrête à la couche j (r_j) à partir de l'amplitude réfléchie à l'étape précédente (r_i). Notons que toutes les contributions résultant des réflexions multiples sont inclues dans ce calcul. Cette formule se démontre facilement par récurrence (voir par exemple [Gautier05c] ou [Macleod]).



$$r_j = \frac{r_{j,i} + r_i e^{2i\varphi_j}}{1 + r_{j,i} r_i e^{2i\varphi_j}} \qquad (3.4)$$

avec $\varphi_j = \frac{2\pi}{\lambda}\tilde{n}_j e_j$

et $r_1 = r_{1,s}$

Figure 5 : Schéma d'un empilement de couches minces

La réflectivité de l'empilement multicouche est alors donnée par : $R = |r_N|^2$

<u>Cas particulier d'un empilement périodique : loi de Bragg</u>

Si l'on considère un empilement périodique constitué d'une alternance de deux matériaux H et L, la formule de Bragg[13] modifiée pour tenir compte de la réfraction (équation 3.5) permet de calculer la période d de l'empilement pour un angle de rasance θ et une longueur d'onde λ donnés.

$$m\lambda = 2d\sin\theta\sqrt{1-\frac{2(1-n_{eff})}{\sin^2\theta}} \qquad (3.5)$$

où m représente l'ordre de diffraction, et n_{eff} l'indice moyen de l'empilement défini par l'équation 3.6.

$$n_{eff} = \frac{\sum_i e_i n_i}{\sum_i e_i} \qquad (3.6)$$

La formule de Bragg, initialement établie pour la rendre compte de la diffraction par des cristaux naturels, n'est valable que sous certaines hypothèses. Tout d'abord le décrément à un de l'indice (1-n) doit être petit devant 1. Ensuite le coefficient d'absorption k doit être négligeable devant (1-n). Dans la pratique, ces deux hypothèses ne sont pas toujours vérifiées dans le domaine XUV. Par exemple, nous comparons dans le tableau 3 les positions de pic de Bragg obtenu par l'équation 3.5 et par simulation à l'aide du logiciel IMD pour une multicouche Mo/a-Si. Pour les longueurs d'onde supérieures à 7 nm, le loi de Bragg donne une erreur supérieure à 0,1 nm sur la position du pic.

Tableau 3 : Position du pic de Bragg simulé par IMD et calculé selon la loi de Bragg pour une multicouche Mo/a-Si (100 périodes, $e_{Mo} = e_{Si}$).

période	position du pic (simulation IMD)	position du pic (eq.3.5)
1 nm	1,995 nm	1,995 nm
4 nm	7,89 nm	7,89 nm
7 nm	13,6 nm	13,45 nm
10 nm	18,4 nm	17,9 nm
15 nm	26,71 nm	25,8 nm

[13] Aussi appelée « loi de Bragg ».

3.2 Conception des empilements multicouches

Les miroirs multicouches XUV sont généralement constitués d'un empilement périodique de deux matériaux déposés sur un substrat massif (silice, silicium, …). On notera d la valeur de la période de l'empilement, H le matériau le plus absorbant et L le moins absorbant. Du fait de l'absorption des matériaux dans ce domaine spectral, la réflectivité du miroir peut être optimisée en choisissant convenablement les épaisseurs respectives des deux matériaux dans une période. Dans une multicouche optimisée, l'épaisseur du matériau H sera inférieure à d/2. En fait, en réduisant l'épaisseur du matériau H, l'absorption dans une période est réduite et la lumière pénètre plus profondément dans l'empilement. Mais, dans le même temps, l'efficacité en réflexion de chaque période est réduite car on s'écarte du cas idéal de la lame « quart d'onde ». Il y a donc compétition entre l'efficacité de chaque période et le nombre de périodes effectives. Cela est bien illustré sur la figure 6 où nous avons tracé la réflectivité et la transmission à 15,5 nm d'une période de Mo/Si en fonction de l'épaisseur de Mo normalisée par la période (dans ce cas le Mo est le matériau H). Pour une épaisseur de Mo valant la moitié de la période (trait en pointillé sur la figure), on obtient une réflectivité de 1,4% et une transmission de 93%. En réduisant l'épaisseur de Mo, on constate que la transmission de la période augmente et que sa réflectivité diminue. En simulant une multicouche de 50 périodes dans les mêmes conditions, on trouve que l'épaisseur normalisée de Mo qui optimise la réflectivité du miroir est de 0,35.

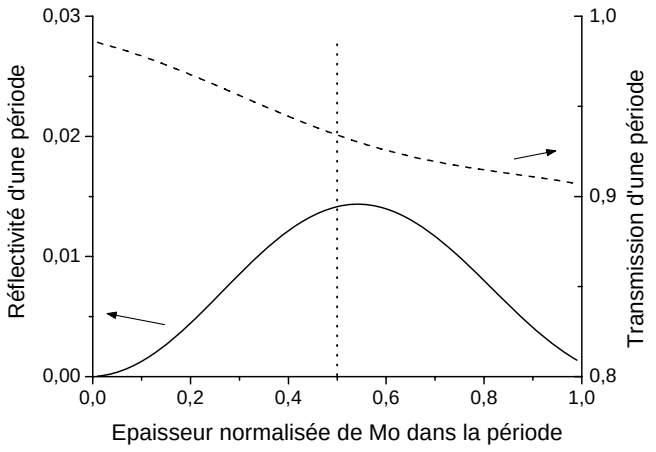


Figure 6 : réflectivité et transmission à λ=15,5 nm d'une période Mo/Si de 8 nm d'épaisseur totale en fonction de l'épaisseur de Mo.

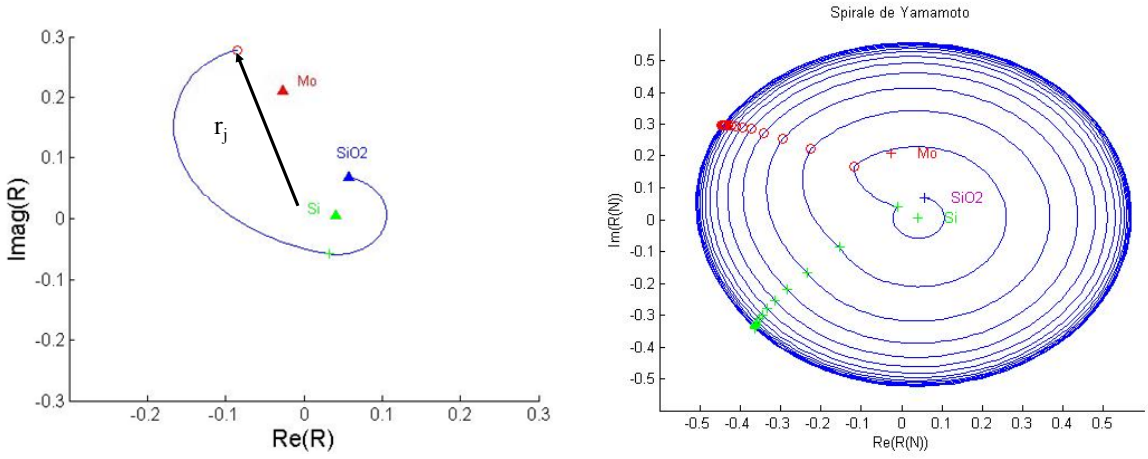
Le premier problème pour la conception de miroirs XUV réside dans le choix des matériaux constituant l'empilement. De nombreux critères peuvent être considérés (stabilité des interfaces, toxicité, coût, …) mais le premier critère reste le comportement optique, c'est-

à-dire la valeur de l'indice complexe des matériaux. Il est souvent supposé dans la littérature que la réflectivité est maximisée si l'on choisit une combinaison des deux matériaux, l'un peu absorbant (dit léger, ou espaceur) et l'autre fortement absorbant (dit lourd, ou réflecteur). Cette idée provient de l'analogie avec les cristaux naturels, dans lesquels les plans atomiques (réflecteurs) sont espacés par la maille du réseau cristallin. Elle est relativement bien vérifiée dans le domaine des rayons X (E > 1keV). Cependant, du fait de l'absorption, elle n'est pas applicable au domaine XUV. Spiller a proposé un critère de sélection des matériaux pour cette gamme spectrale.[Spiller88] Il recommande de choisir d'abord le matériau le moins absorbant (L) puis de choisir un deuxième matériau de manière à maximiser le coefficient de réflexion à l'interface H/L. Il ajoute qu'à coefficient de réflexion identique, on choisira le matériau H le moins absorbant possible. Bien que ces critères de choix semblent a priori logiques, ils ne sont validés par aucune théorie.

Une autre stratégie pour choisir les matériaux consiste à essayer en simulation tous les couples possibles et à retenir les meilleurs. Ainsi dès 1988, Rosenbluth a publié les meilleurs couples de matériaux parmi les éléments du tableau périodique, pour des longueurs d'onde comprises entre 0.6 nm et 12.4 nm.[Rosenbluth] Une approche similaire a été utilisé par Kearney quelques années plus tard sur la gamme 1 nm à 12.4 nm en incluant des matériaux composés.[Kearney] Cette approche n'apporte cependant aucune compréhension physique sur l'optimisation de l'empilement.

Une représentation graphique, proposée par Masaki Yamamoto en 1992, permet de visualiser l'évolution de la réflectivité au fur et à mesure que l'on fait croître la multicouche.[Yamamoto] Il s'agit de tracer la réflectivité de l'empilement dans le plan complexe en fonction de l'épaisseur déposée. Un exemple de construction est présenté sur la figure 7a pour un empilement Mo/Si sur SiO_2 d'une seule période optimisé pour réfléchir une longueur d'onde de 32 nm. Les triangles représentent les coefficients de Fresnel des matériaux, notés r_{Mo}, r_{Si} et r_{SiO2} et définis comme étant les coefficients de réflexion en amplitude à l'interface vide/matériau (voir équation 3.2). Lorsque le substrat est nu, la réflectivité est égale au coefficient de Fresnel du substrat r_{SiO2}. En déposant le silicium, la spirale commence par tourner autour de r_{Si} puis au changement de matériau (indiqué par une croix verte), la spirale tourne autour de r_{Mo}. On peut en effet montrer, en négligeant les termes d'ordre 2, que la spirale de réflectivité se construit par rotations successives autour des coefficients de Fresnel des matériaux que l'on dépose. Du fait de l'absorption, la réflectivité se rapproche du coefficient de Fresnel concerné au fur et à mesure que l'épaisseur du matériau croît. L'effet de

l'absorption élevée du Mo se retrouve sur la figure 7a : la spirale se rapproche fortement de r_{Mo}.



(a) *(b)*

Figure 7 : Tracés de r_j pour une période de Mo/Si (a) et 15 périodes de Mo/Si (b) déposée sur substrat de SiO2 pour une longueur d'onde λ = 32 nm[GAUTIER05c]

La figure 7b montre le même type de construction pour une multicouche périodique Mo/Si de 15 périodes. On notera que les épaisseurs de Mo et Si optimales dans ce cas sont différentes de celles de la figure 7a. La spirale atteint une trajectoire limite du fait de l'absorption. Pour maximiser la réflectivité de la multicouche, les coefficients de Fresnel des deux matériaux choisis devront d'une part avoir la plus petite partie imaginaire possible (c'est-à-dire être situés près de l'axe des abscisses) et d'autre part être le plus éloignés possible dans le plan. Nous avons tracé sur la figure 8 les coefficients de Fresnel de plusieurs matériaux usuels pour une longueur d'onde de 13.4 nm. D'après les critères de Yamamoto, le couple Mo/Si apparaît bien comme étant le plus performant.

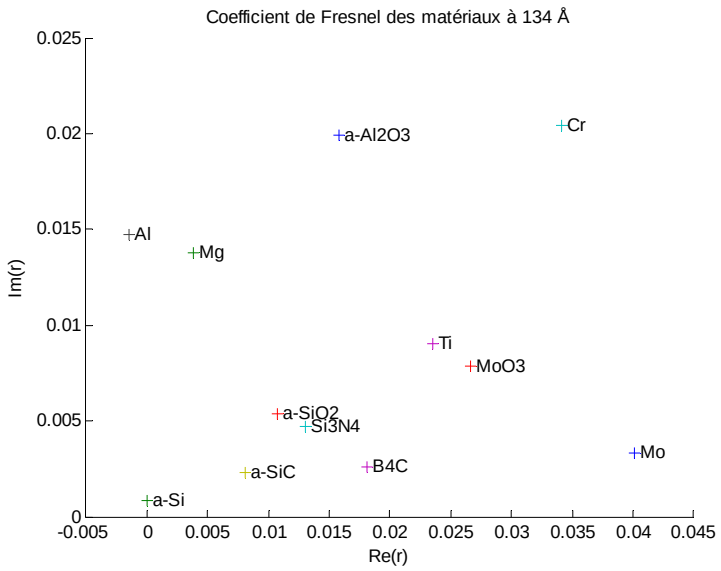


Figure 8 : Coefficient de Fresnel de plusieurs matériaux usuels pour λ = 13,4 nm.

3.3 Dépôt d'empilements de couches minces

Du fait du nombre important de seuils d'absorption dans le domaine XUV, il est nécessaire de changer de matériaux dès que la longueur d'onde d'utilisation du miroir multicouche varie significativement. Il est donc indispensable de disposer d'une méthode de dépôt suffisamment flexible, pour laquelle les précurseurs de dépôt sont facilement accessibles et qui procure des couches minces d'épaisseur très bien contrôlée et de bonne qualité quelque soit le type de matériau (isolant, semiconducteur ou métal). Il n'est donc pas surprenant de constater que les méthodes de dépôt par voie physique (*i.e.* à partir de précurseurs à l'état solide) se sont très largement imposées dans le domaine de l'optique XUV devant les méthodes de dépôt par voie chimique (*i.e.* à partir de précurseur à l'état gazeux ou liquide). Ces dernières souffrent en effet de l'absence de précurseurs pour certains éléments et/ou de difficulté de mise en œuvre (pour les précurseurs organométalliques par exemple).

Parmi les méthodes « physiques », la pulvérisation cathodique magnétron est de loin la plus répandue, que ce soit en laboratoire ou dans les entreprises du domaine XUV. Plus de deux tiers des équipements que nous avons pu recenser dans la bibliographie sont en effet des équipements de pulvérisation cathodique magnétron (voir l'annexe A). Le tiers restant se répartit entre la pulvérisation par faisceau d'ions, l'évaporation assistée et l'ablation laser. Cette dernière technique reste cependant très marginale. Notons que la pulvérisation par faisceau d'ions a eu un regain d'intérêt pour la réalisation des masques en réflexion pour la lithographie EUV. Il a été montré que cette technique induisait moins de "défauts" que la pulvérisation cathodique magnétron du fait d'une plus basse pression de travail.[Becker]

Mentionnons également que la recherche de méthodes de dépôt alternatives est toujours d'actualité, notamment pour tenter de se rapprocher de la « perfection atomique ». L'épitaxie par jets moléculaires avait déjà été utilisée pour réaliser des empilements XUV dans les années 90 [Kearney]. Plus récemment, le dépôt de couche atomique (ALD) a permis de réaliser des multicouches W/Al2O3 de très faible période [Fabreguette].

Il est instructif de comparer les performances mesurées sur les échantillons témoins des imageurs EUV des missions SOHO et STEREO. Ces empilements multicouches, réalisés à 12 ans d'intervalle, sont constitués des mêmes matériaux (Mo et Si) mais ont été déposés par des techniques différentes (évaporation par canon à électrons pour SOHO et pulvérisation par faisceau d'ions pour STEREO). L'utilisation de dépôt par pulvérisation a permis d'augmenter le nombre de couches déposées tout en diminuant la rugosité aux interfaces. Nous avons représenté sur la figure 9 les spectres mesurés pour deux des quadrants (17.1 nm et 30.4 nm). La nette amélioration de réflectivité reflète la progression qui a eu lieu en une dizaine d'années sur les techniques de dépôt.

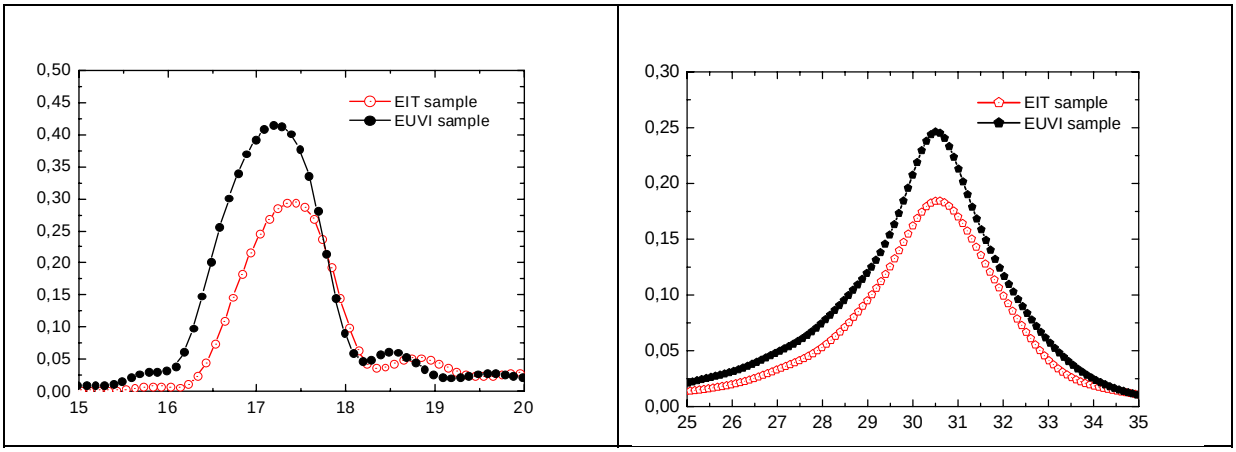


Figure 9 : Réflectivité mesurée en fonction de la longueur d'onde (en nm) sur les échantillons témoins de deux quadrants des télescopes EIT (SOHO, 1991) et EUVI (STEREO, 2003)

Les deux machines dont nous disposons au laboratoire sont décrites dans la suite de ce paragraphe. Nous montrerons notamment comment nous avons pu améliorer leurs performances en termes d'uniformité des épaisseurs déposées.

3.3.1 Dépôt par pulvérisation ionique (bâti IBS)

La machine de pulvérisation par faisceau d'ions du laboratoire (IBS : ion beam sputtering) est représentée sur la figure 10. Elle est constituée d'une enceinte sous vide cryogénique (pression résiduelle inférieure à 10^{-8} mbar) équipée d'un sas permettant de transférer des échantillons jusqu'à 125 mm de diamètre. Le porte échantillon est animé d'un mouvement de

rotation afin d'améliorer l'uniformité du dépôt. Un canon à ions à cathode creuse (Veeco, 3 cm Hallow Cathode Ion Gun) pulvérise successivement les cibles montées sur un porte cible rotatif. Un neutraliseur envoie des électrons dans l'enceinte et permet d'éviter l'accumulation de charges sur les cibles dans le cas de matériaux isolants. Une microbalance à quartz assure la mesure *in situ* des épaisseurs déposées. La rotation des cibles est commandée par cette mesure.

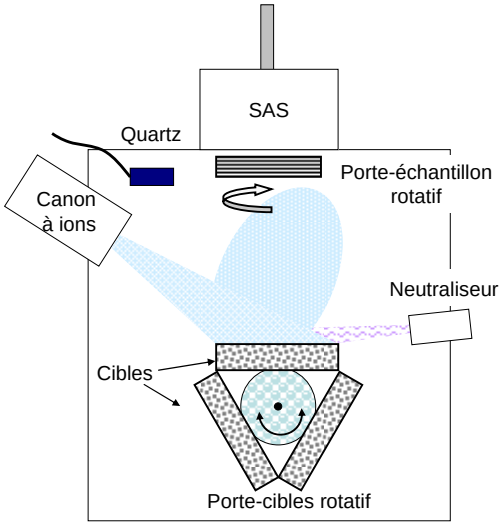


Figure 10 : Schéma du bâti de pulvérisation par faisceau d'ions

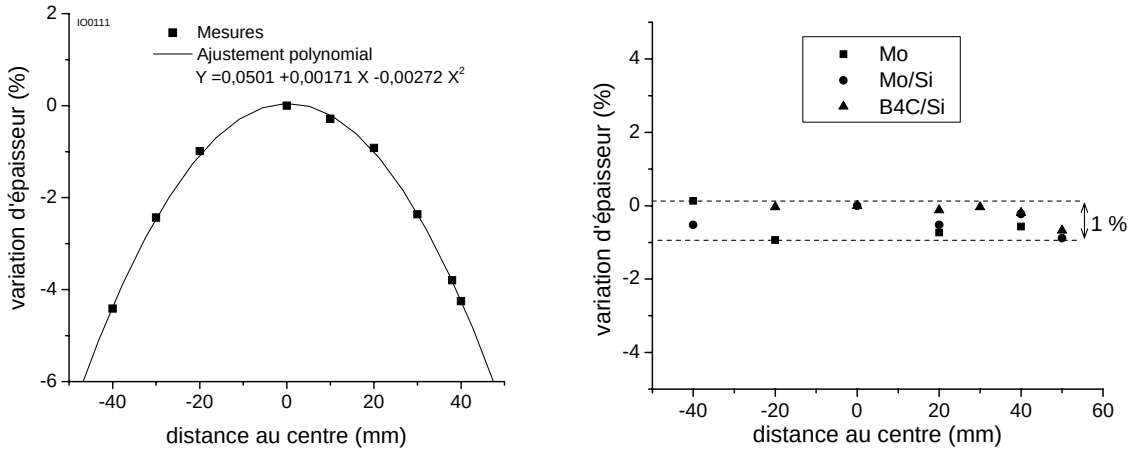


Figure 11 : (a) profil mesuré pour un dépôt de Mo sans masque, (b) profils mesurés pour des dépôts avec masque de correction d'uniformité sur une couche mince de Mo, une multicouche Mo/Si et une multicouche B4C/Si.

L'énergie des ions d'argon est de l'ordre de 650 eV et le courant d'ions de 30 mA. L'angle d'incidence des ions sur la cible est de 60 degrés. L'uniformité du dépôt a été mesurée dans ces conditions sur une couche mince de Mo. Les résultats sont représentés sur la figure 11a. Le profil est parabolique avec une perte d'épaisseur d'environ 4,5% par rapport au centre pour un diamètre d'échantillon de 80 mm. L'utilisation d'un masque fixe placé proche de la

surface de l'échantillon permet de corriger cette non uniformité. La forme du masque a été calculée à partir du profil mesuré (figure 11a) et a permis d'atteindre une uniformité meilleure que 1% sur des échantillons de 100 mm de diamètre. La figure 11b présente les résultats obtenus sur trois types de dépôt : une couche mince de Mo, une multicouche Mo/Si et une multicouche B4C/Si. Nous avons ainsi pu vérifier que l'uniformité obtenue est indépendante du matériau déposé.

3.3.2 Dépôt par pulvérisation cathodique magnétron (bâti MP800)

Le bâti de pulvérisation cathodique magnétron MP800, fabriqué par la société Plassys, est également constitué d'une chambre sous vide cryogénique (pression résiduelle inférieure de l'ordre de 10^{-8} mbar) et d'un sas d'introduction pour des échantillons de diamètre inférieur à 125 mm. Quatre cathodes magnétron sont placées dans la partie inférieure de l'enceinte et isolées les unes des autres par des boites de confinement. Deux cathodes sont alimentées en mode continu (pulvérisation DC) et deux en mode radiofréquence (pulvérisation RF). L'échantillon est placé sur un plateau qui tourne au dessus des cibles et est animé d'un mouvement de rotation sur lui-même (figure 12). Pour des conditions de plasma fixées, l'épaisseur déposée lors d'un passage au dessus d'une cible est déterminée par la vitesse de passage. Si l'échantillon tourne suffisamment vite sur lui-même, tous les points à égale distance du centre ont la même épaisseur.

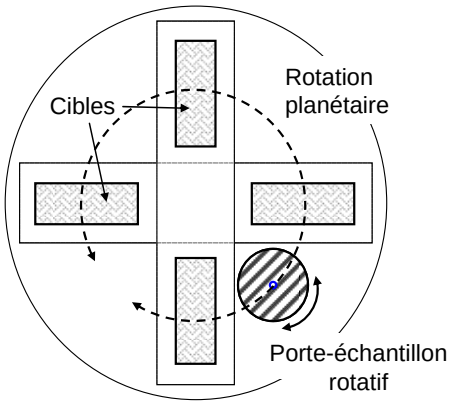


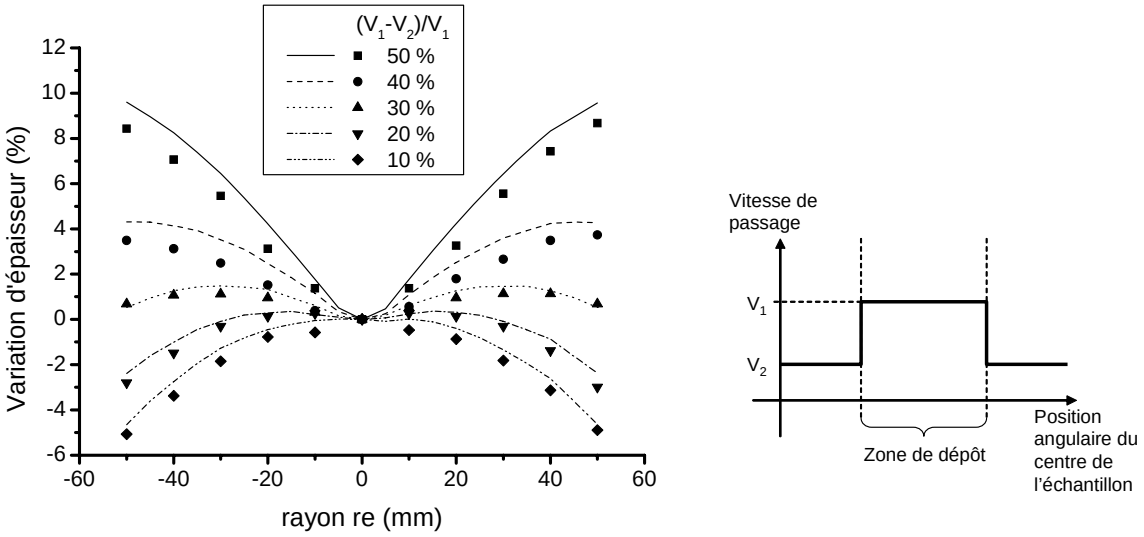
Figure 12 : Schéma du bâti de pulvérisation cathodique magnétron (vue de dessus)

L'influence des différents paramètres (puissance sur la cathode, pression du gaz, distance cible échantillon) sur la vitesse de dépôt a été étudiée durant la thèse de Julien Gautier[Gautier05c] et les stages de Marc Roulliay[Roulliay] et d'Aurélie Hardouin.[Hardouin04] Les résultats sont détaillés dans leurs rapports respectifs. Nous ne présenterons ici qu'un bilan des performances obtenues en terme d'uniformité avec cette machine.

Nous utilisons généralement une pression d'argon de 2mTorr pour générer le plasma et une distance cible échantillon de 10 cm. Les puissances utilisées en mode RF sont comprises entre 80 et 150 W et les courants utilisés en mode DC entre 50 et 200 mA.

Dans ces conditions, le profil d'uniformité obtenu lorsque l'échantillon passe à vitesse constante au dessus d'une cible est proche de celui mesuré sur la machine IBS: la forme est parabolique et la diminution d'épaisseur sur les bords est de l'ordre de 5% pour un diamètre de 100 mm. Cependant, avec cette géométrie de dépôt, il est possible de corriger l'uniformité sans utiliser de masque mais en jouant simplement sur la vitesse de passage de l'échantillon au dessus des cibles.

Un programme de simulation des trajectoires de chaque point de l'échantillon nous permet de calculer le profil d'épaisseur attendu en fonction du profil de variation de vitesse imposé à l'échantillon. Avec un profil créneau tel que celui représenté sur la figure 13b), le profil d'uniformité peut être corrigé et même inversé suivant le pourcentage de variation de vitesse ente les deux marches du créneau (voir figure 13a). Ce programme prend également en compte le profil de dépôt en statique de la cible en le modélisant par un produit de paraboles de coefficient K.[14] L'ajustement de ce paramètre permet d'obtenir un bon accord entre la théorie et la mesure.

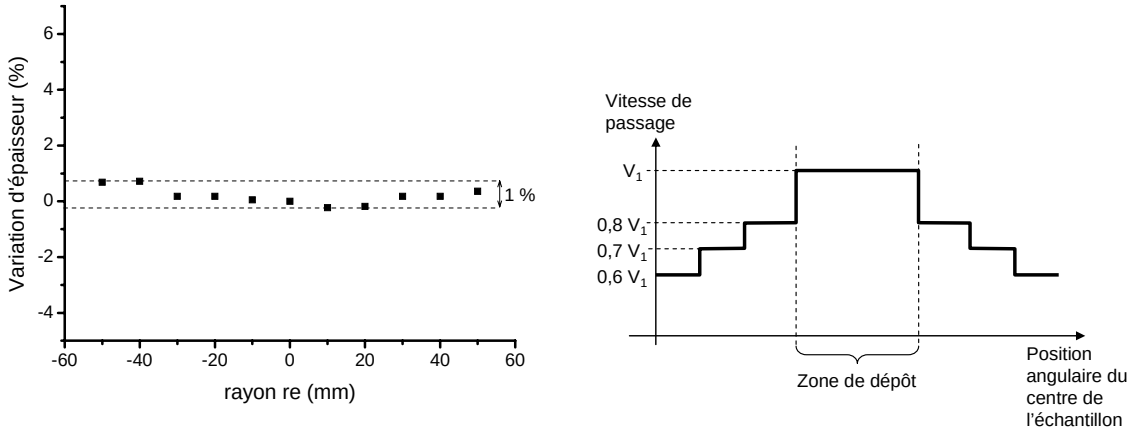


(a) (b)

Figure 13 : (a) profils d'uniformité mesurés (points) et simulés (traits) pour différents pourcentages de changement de vitesse pour une multicouche Mo/Si et (b) profil de variation de vitesse utilisé. Les simulations sont effectuées avec un paramètre $K = 5.8\ 10^{-5}\ mm^{-2}$.

[14] Le profil statique normalisé à l'épaisseur au centre s'exprime sous la forme $(1 - K x^2)(1- K y^2)$ avec un repère (xy) centré sur la cible (l'épaisseur maximale étant supposée centrée sur la cible).

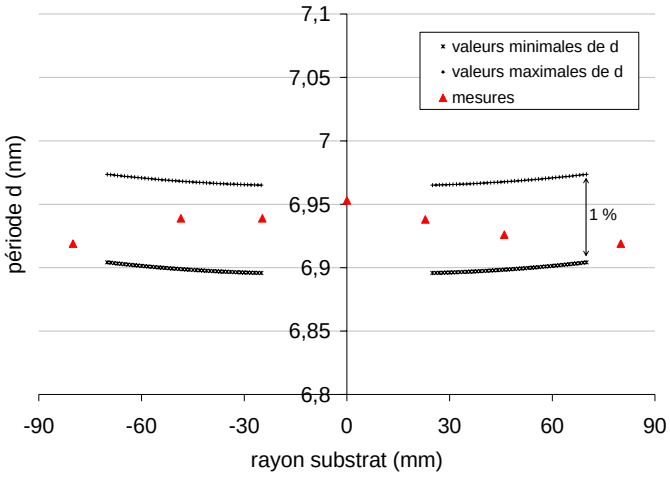
Sur la figure 13a, nous comparons les profils mesurés aux profils simulés avec un paramètre K ajusté à 5.8×10^{-5} mm^{-2}. Cette valeur est du même ordre de grandeur que celle mesurée sur un dépôt statique en face de la cible de Mo (entre 4 et 5×10^{-5} mm^{-2} suivant la position). L'uniformité du dépôt peut encore être optimisée en choisissant un profil de variation de vitesse plus complexe. Nous avons démontré expérimentalement une uniformité de ±0.5% sur 100 mm de diamètre (figure 14a) en utilisant le profil avec trois variations de vitesse représenté en figure 14b.

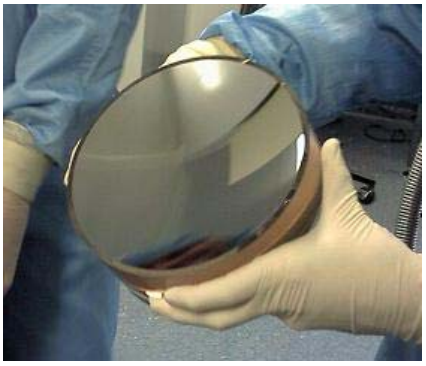


(a) (b)

Figure 14 : (a) profil d'uniformité mesuré pour un dépôt Mo/Si sur substrat plan avec trois changements de vitesse et (b) profil de variation de vitesse utilisé.

Nous n'avons considéré jusqu'à présent que le cas de dépôt sur des substrats plans. Dans le cas d'un dépôt sur substrat courbe, il faut tenir compte, en plus de la « non uniformité naturelle » du dépôt (*i.e.* le profil déposé sur un substrat plan sans correction d'uniformité), de la variation de distance cible échantillon engendrée par la courbure ainsi que de l'éventuelle variation d'angle d'incidence (et donc de période visée) en fonction de la position sur le miroir. Dans certains cas, ces effets se compensent partiellement ce qui facilite donc la réalisation du profil d'épaisseur souhaité. Par exemple, nous avons pu réaliser un dépôt uniforme sur un substrat concave de 190 mm de diamètre et de 17 mm de flèche en utilisant un seul changement de vitesse. La figure 15 montre que l'uniformité obtenue est meilleure que ±0.5% et rentre dans les spécifications recherchées pour ce type d'optique.





(a) (b)

Figure 15 : Variation expérimentale d'épaisseur en fonction du rayon (a) pour un dépôt sur substrat concave de 190 mm de diamètre (b).

3.4 Caractérisation des couches minces et des multicouches

Comme nous le verrons par la suite, il est généralement nécessaire de combiner plusieurs méthodes d'analyse afin de caractériser finement les structures multicouches réalisées. En effet, les performances optiques dépendent de multiples paramètres structuraux et physico-chimiques et seules des mesures indépendantes de ces paramètres permettent de modéliser correctement le comportement optique. Nous donnons dans les tableaux 4 et 5 un aperçu synthétique des différentes méthodes utilisées au cours de nos études en rappelant le principe physique de la mesure et les paramètres accessibles. Pour une description plus détaillée, on pourra se rapporter aux documents cités dans la colonne « références ».

Tableau 4 : Méthodes optiques de caractérisation des couches minces et des multicouches

Méthodes	Principe physique	Informations recherchées	Remarques	Références
Réflectométrie des X rasants à 0.154 nm	Mesure du rayonnement X (source Cu Kα) réfléchi en mode spéculaire en fonction de l'angle d'incidence	Epaisseurs et indices à 0.154nm des couches minces, rugosité des interfaces.	Excellente précision sur les épaisseurs.	[Nevot88] [Bridou90] [Erko]
Réflectométrie EUV sur rayonnement synchrotron	Mesure du rayonnement EUV réfléchi en mode spéculaire en fonction de l'angle d'incidence ou de l'énergie des photons	Réflectivité absolue (ou transmission) des empilements multicouches, position des pics de Bragg, sélectivité spectrale.	+ Bonne précision - accès restreint (appel à projet d'expériences tous les 6 mois).	[ALS] [Nannarone]
Réflectométrie EUV sur source plasma laser	Mesure du rayonnement EUV réfléchi en mode spéculaire en fonction de l'angle d'incidence ou de l'énergie des photons	Réflectivité (ou transmission) des empilements multicouches, position des pics de Bragg, sélectivité spectrale.	+ Facilité d'accès - rapport S/B plus élevé et pureté spectrale mois bonne que sur synchrotron	[Hecquet06]
Ellipsométrie à annulation à 546,1 nm	Mesure du changement de polarisation de la lumière lors de la réflexion sur l'échantillon.	Indice de réfraction à 546,1 nm et épaisseur du film. Précision : ±0,005 sur l'indice et ±1 nm sur l'épaisseur	Pour couches minces transparentes uniquement. - Suppose le film transparent et les interfaces parfaites.	[McCrackin] [Azzam]
Interférométrie à anneaux de Newton à 532 nm.	Mesure du changement de forme de l'échantillon (mesures avant et après le dépôt).	Contraintes mécanique induites par le dépôt de couche mince ou d'empilement multicouche. précision : ±10%	- Nécessite des substrats minces et peu déformés.	[Windischmann, Davis]

Tableau 5 : Méthodes physico-chimiques de caractérisation des couches minces et des multicouches

Méthodes	Principe physique	Informations recherchées	Remarques	Références
Analyse par rétrodiffusion coulombienne (RBS)	Analyse en énergie des particules $^{4}He^{+}$ rétrodiffusées par l'échantillon (faisceau incident $^{4}He^{+}$ de 2 MeV).	Composition des couches minces (en atomes/cm^{2}) et présence d'impuretés.	Analyse quantitative des éléments plus lourds que le substrat - Aucune information sur les liaisons chimiques	[Agius] [Chu]
Analyse par réactions nucléaires (NRA)	Analyse en énergie des particules produites par réaction nucléaire sur l'échantillon. Exemple de réactions utilisées : $^{11}B(p,\alpha)^{8}Be$ $^{12}C(d,p)^{13}C$	Stoechiométrie composition des couches minces (en atomes/cm^{2}). Détection limite 10^{14} atomes/cm^{2} pour l'oxygène.	Analyse quantitative des éléments plus léger que le substrat - Aucune information sur les liaisons chimiques	[Agius] [Chu]
Spectroscopie de photoélectrons X (XPS)	Analyse en énergie des électrons générés par effet photoélectrique à la surface de l'échantillon	Composition de la surface des couches minces, nature des liaisons chimiques.		[Briggs] [Eberhart]
Spectroscopie d'émission de rayons X (XES)	Analyse en énergie des rayons X émis par l'échantillon sous l'effet d'un bombardement électronique	Nature des liaisons chimiques dans les couches minces et aux interfaces des multicouches		[Eberhart]
Spectroscopie de masse des ions secondaires (SIMS)	Analyse en masse des ions éjectés de la surface de l'échantillon par pulvérisation ionique.	Répartition des différents constituants dans l'empilement en fonction de la profondeur	Le profil en profondeur est obtenu en combinant le SIMS avec une érosion ionique de l'échantillon	[Eberhart]
Microscopie à force atomique (AFM)	Balayage de la surface à analyser avec une pointe très fine et asservissement de sa hauteur par les interactions atomiques avec la surface.	Topographie de la surface de la couche ou de l'empilement à l'échelle micrométrique. Résolution verticale de quelques 0.1 nm.	Information sur la rugosité de surface complémentaire des mesures en X rasants qui atteignent la rugosité des interfaces	[Aigouy]
Microscopie électronique à transmission (TEM)	Imagerie des électrons diffusés élastiquement en traversant une section mince de l'échantillon.	Profil et microstructure des différents matériaux constituant l'empilement.	+ résolution sub nanométrique - difficulté de préparation des échantillons et risque de modification des interfaces.	[Eberhart]

4 Bilan des travaux

Comme nous l'avons vu précédemment, la réalisation d'optiques multicouches pour le domaine spectral XUV est rendue difficile par les propriétés optiques des matériaux à ces longueurs d'onde très courtes. D'une part, l'absorption est non nulle et augmente avec la longueur d'onde. D'autre part, la réfraction est faible et ne permet pas de réfléchir efficacement la lumière à une interface. Pourtant, comme nous l'avons vu au chapitre 2, le développement des sources et des applications dans ce domaine spectral requiert des composants optiques toujours plus performants, sur une gamme spectrale étendue et/ou avec des fonctions spécifiques.

Les objectifs de nos recherches sur les miroirs multicouches peuvent ainsi se résumer en deux points :

- améliorer les performances des miroirs multicouches sur une gamme spectrale étendue ;
- concevoir de nouvelles fonctions optiques : lames séparatrices, miroirs large bande, miroirs bibandes, miroir à profil de phase spectrale spécifié, ...

Pour tenter de répondre à ces objectifs, nous avons développé deux approches complémentaires. La première concerne l'étude et le développement de matériaux en couches minces afin de créer de nouveaux empilements et l'optimisation des interfaces (« interface engineering ») entre ces matériaux. Une bonne connaissance des propriétés physico-chimiques et optiques de matériaux en couche mince et des interfaces est en effet indispensable pour modéliser correctement les performances des miroirs dans le domaine XUV. La seconde approche consiste à proposer et étudier de nouvelles structures d'empilement permettant d'optimiser les performances recherchées : structure périodique tri matériaux, structure bi périodique, structure apériodique, optimisation des couches de surface...

Une problématique commune à ces deux approches concerne la nécessité de modéliser correctement les performances des miroirs multicouches afin de réduire l'écart entre les prédictions théoriques issues de simulations et les résultats expérimentaux. Cette modélisation permet de plus d'identifier les défauts les plus pénalisants dans une structure donnée, et donc de réduire ou de contourner ces défauts (par l'une ou l'autre des approches décrites précédemment) afin d'optimiser la structure. Nous verrons dans les paragraphes suivants plusieurs exemples d'études qui montrent que seule la combinaison de plusieurs méthodes d'analyse (optiques et/ou physico-chimiques) permet d'aboutir à une modélisation fiable des miroirs multicouches.

4.1 Lames séparatrices

4.1.1 Objectif de l'étude

La difficulté de concevoir et réaliser des lames séparatrices, et plus généralement des optiques en transmission, dans le domaine EUV provient essentiellement de l'absorption relativement importante des matériaux dans cette gamme spectrale. Pour obtenir une transmission non négligeable (typiquement > 1%) il est indispensable de travailler avec des films minces autosupportés (ou membranes) d'épaisseur inférieure à environ 100 nm.

Une seconde difficulté s'ajoute à la précédente : la nécessité d'utiliser un empilement multicouche afin de réfléchir une partie du faisceau incident sous une incidence non rasante.

Deux technologies, toutes deux issues des progrès réalisés en microtechnologies, ont été développées au CXRO dans les années 1990 afin d'obtenir un miroir multicouche sous forme de membranes extrêmement minces. La première consiste à déposer une multicouche sur un substrat de silicium recouvert d'une couche mince (typiquement 20 nm de nitrure de silicium) puis à réaliser une gravure humide sur la face arrière du silicium afin de libérer la membrane (le nitrure de silicium servant de couche d'arrêt pour la gravure). La seconde consiste à réaliser d'abord une membrane de nitrure de silicium (typiquement 100nm d'épaisseur) puis à déposer l'empilement multicouche sur cette membrane. Ces deux solutions technologiques sont représentées sur la figure 16. Le choix entre ces deux solutions dépend essentiellement du signe des contraintes mécaniques induites par le dépôt de multicouche[15], l'objectif étant d'obtenir au final un empilement en légère tension.

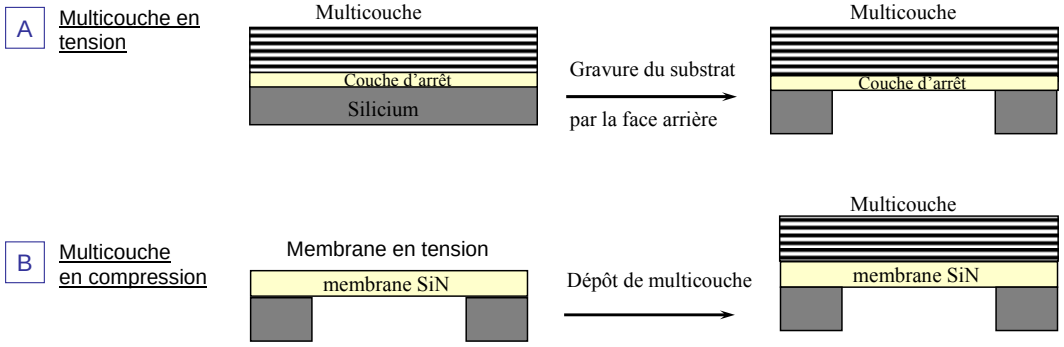


Figure 16 : Représentation schématiques des technologies utilisées pour réaliser une lame séparatrice XUV

Dans ce contexte, nous nous sommes intéressés à la réalisation de lames séparatrices pour un interféromètre de Michelson sur source laser X à 13,9 nm (E=89,2eV). La particularité de ce montage optique, schématisé sur la figure 17, est que la lame séparatrice

[15] Un dépôt en compression (respectivement tension) correspond par convention à une contrainte négative (respectivement positive) et a tendance à rendre le substrat convexe (respectivement concave).

doit réfléchir de manière efficace sur ses deux faces puisque l'un des faisceaux (noté 1 sur le schéma) est réfléchi puis transmis alors que l'autre (noté 2) est transmis puis réfléchi.

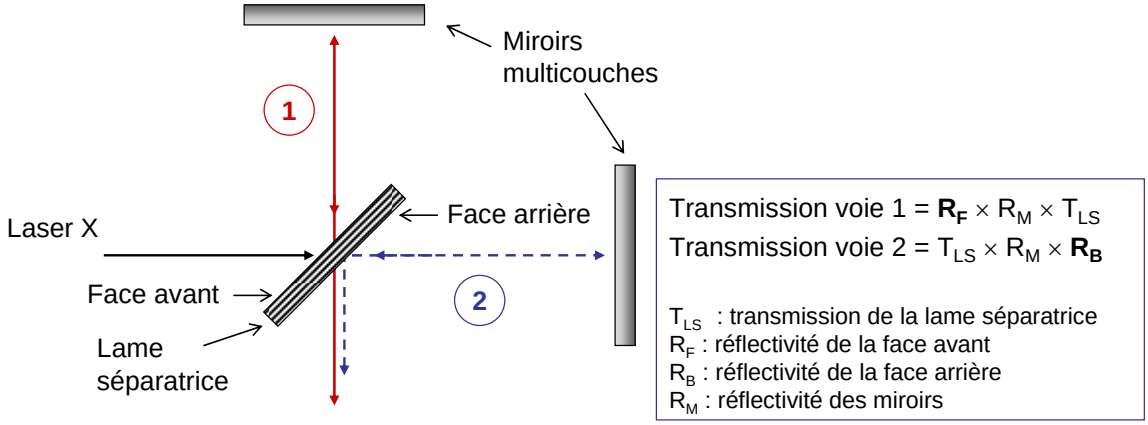


Figure 17 : Schéma de l'expérience d'interférométrie de Michelson XUV.

Compte tenu des fortes tensions mécaniques en compression induites lors des dépôts de multicouches Mo/Si en pulvérisation, nous avons choisi comme point de départ la seconde solution technologique (fig. 16B). Celle-ci permet en effet, en choisissant une membrane de nitrure de silicium fortement contrainte en tension, de conserver une contrainte en tension pour l'ensemble de la structure, une fois la multicouche déposée. Nous avons apporté une amélioration à cette configuration en déposant successivement une multicouche de part et d'autre de la membrane afin d'obtenir une lame séparatrice symétrique et ainsi d'améliorer le contraste des franges dans l'interféromètre. La structure que nous avons conçue est représentée sur la figure 18.

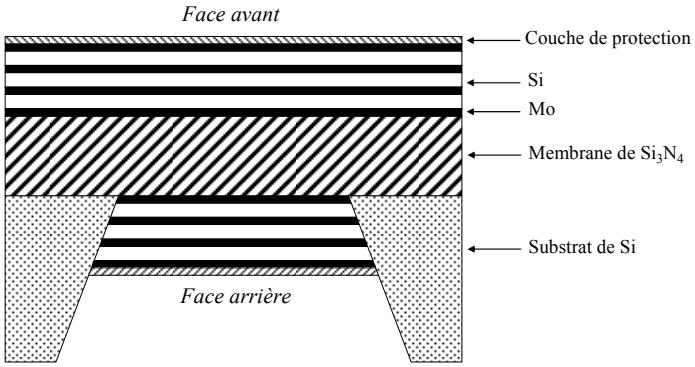
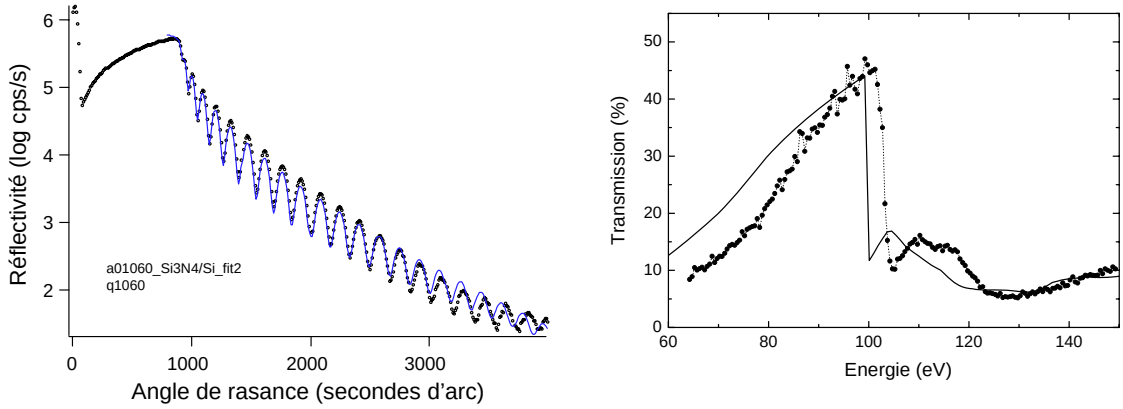


Figure 18 : Schéma de la lame séparatrice symétrique

4.1.2 Caractérisation de la membrane et optimisation de la séparatrice

Les membranes de nitrure de silicium, d'ouverture 5 par 5 mm² et d'épaisseurs comprises entre 80 et 100 nm ont été achetées chez Fastec Fabrications Ltd (Silverstone, UK). La première étape de notre étude a consisté à caractériser les membranes de nitrure de silicium afin de pouvoir simuler correctement le comportement de la séparatrice. Le fait de

déposer un miroir multicouche de part et d'autre de la membrane crée une cavité Fabry Perrot ; les performances optiques de la séparatrice seront donc très sensibles aux paramètres de la cavité (*i.e.* de la membrane de nitrure de silicium). Les membranes ont donc été mesurées en réflexion aux rayons x rasants et en transmission sur rayonnement synchrotron. La figure 19 montre les résultats expérimentaux et les ajustements réalisés en simulation.



(a) *(b)*

Figure 19 : (a) Mesure de la membrane de SiN aux rayons X rasants (points) et ajustement (trait plein) calculé avec une épaisseur de 88,5 nm et une densité de 2,92 g.cm^3 (n_{SiN}=0,9999904).
(b*) Transmission mesurée (points) de la membrane de SiN à 45° dans la gamme 65–150-eV et simulation (trait plein) avec les paramètres déduits de l'ajustement précédent.*

Du fait des contraintes géométriques de l'expérience, nous avons fixé l'angle d'incidence sur la séparatrice à 45°. La source utilisée dans cette expérience est un laser X d'argent nickéloïde qui émet à une longueur d'onde de 13.9 nm.

La simulation de la réflectivité et de la transmission de la structure symétrique présentée figure 18 nous a permis de définir les paramètres optimaux (*i.e.* l'épaisseur de la période, le nombre de périodes et l'épaisseur relative de Mo dans la période). Nous avons montré qu'une structure comprenant 3 périodes de 10 nm (dont 2,5 nm de Mo) sur chaque face maximisait le produit R×T (réflectivité×transmission) de la séparatrice.

4.1.3 Résultats expérimentaux

Ces multicouches ont été déposées sur chaque face de plusieurs membranes d'épaisseur comprises entre 80 et 100 nm. Les réflectivités et transmissions de chaque face ont ensuite été mesurées à 45° d'incidence sur rayonnement synchrotron (ligne SA23, LURE, Orsay).

Les lames séparatrices que nous avons développées présentent des propriétés symétriques : les réflectivités de chaque face ne diffèrent que de 6% (figure 20). La différence de rugosité entre les faces avant et arrière de la membrane SiN (respectivement 0,5 nm et 0,1

nm en rugosité rms mesurée par AFM) permet d'expliquer cette différence de réflectivité. Comme le montre la figure 21, pour une énergie de photons fixée dans la gamme 80-98 eV (12,6-15,5 nm), il est possible d'optimiser le produit RxT de ces lames séparatrices en faisant varier l'épaisseur de la membrane SiN. On obtient des valeurs supérieures à 2% pour la polarisation s sur cette gamme d'énergie.

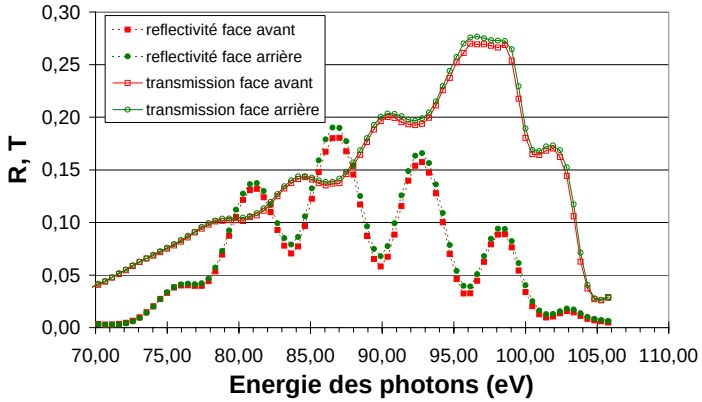


Figure 20 : Mesures sur Rayonnement Synchrotron de la réflectivité R et de la transmission T d'une lame séparatrice sur chaque face. Lame n°7a (épaisseur SiN = 84.9 nm).

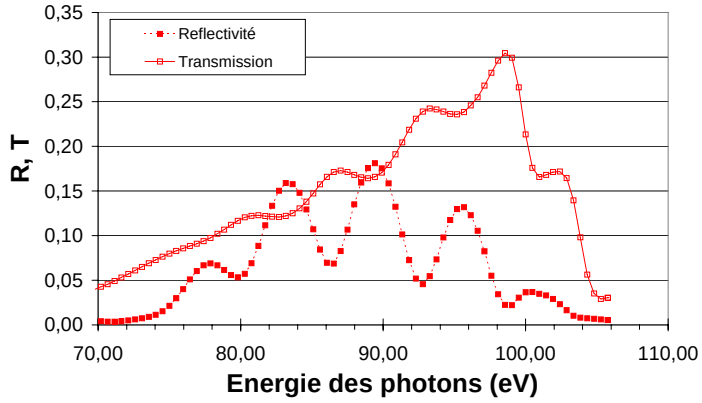


Figure 21 : Mesures sur Rayonnement Synchrotron de la réflectivité R et de la transmission T d'une lame séparatrice optimisée pour 89.2 eV. Lame n°7c (épaisseur SiN = 80.3 nm).

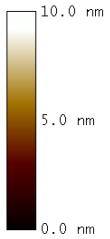
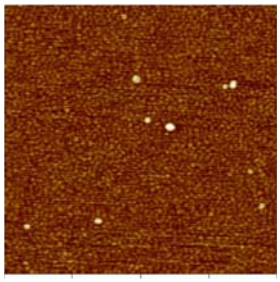
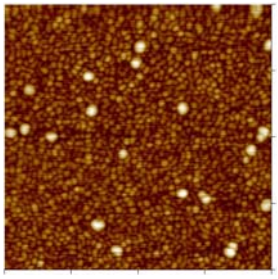
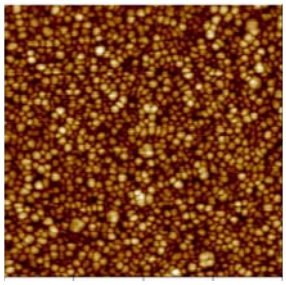
4.2 Amélioration de la réflectivité des miroirs multicouches

Nous décrivons dans cette partie trois études qui ont permis d'améliorer la réflectivité des miroirs multicouches dans le domaine XUV. Nous nous intéresserons d'abord aux deux extrémités de la gamme spectrale : à très basse longueur d'onde (3-4 nm) dans la fenêtre de l'eau, et à plus grande longueur d'onde (40-50 nm), vers l'UV lointain. Nous décrirons ensuite l'augmentation de réflectivité obtenue par l'ajout d'un matériau supplémentaire (l'effet « tri matériau ») dans la gamme 17 – 40 nm.

4.2.1 Miroirs multicouches Cr/Sc pour la fenêtre de l'eau : 3 - 4 nm

La principale limitation de réflectivité pour les miroirs dans la fenêtre de l'eau est la rugosité d'interface. La première étape de notre étude a donc porté sur la caractérisation de la rugosité aux interfaces dans les multicouches Cr/Sc de faible période (environ 4 nm). La combinaison des mesures de rugosité par deux techniques (microscopie à force atomique pour la rugosité de surface et réflectométrie X rasants pour la rugosité moyenne dans l'empilement) en fonction du nombre de périodes dans l'empilement a permis de mettre en évidence un phénomène de rugosité cumulée au cours du dépôt. Ce phénomène induit une dégradation des interfaces au fur et à mesure que l'on augmente le nombre de périodes et limite donc l'efficacité du miroir. Dans ce type de multicouche il faut en théorie 150 périodes pour atteindre la réflectivité optimale (en supposant une rugosité nulle). Les mesures AFM présentées dans le tableau 6 montre une nette dégradation de la rugosité de surface lorsque le nombre de périodes dépasse 60. Ces résultats nous ont permis d'ajuster les courbes de réflectométrie en rayons X rasants en utilisant un modèle de dégradation de la rugosité dans l'empilement. Les ajustements des courbes expérimentales sont présentés sur la figure 22 pour les trois échantillons précédents. Ces modèles ont ensuite permis d'expliquer les performances optiques de ces empilements à la longueur d'onde d'utilisation (raie Kα de l'azote à 3,16 nm).[Hardouin08]

Tableau 6 :Images AFM 1x1µm² obtenues pour trois échantillons ayant un nombres de périodes N différent (27, 60 et 120), et rugosités rms calculées à partir de ces images.

			
N	27	60	120
Rugosité rms	0.7 nm	1.0 nm	1.6 nm

Afin de résoudre ce problème d'accumulation de rugosité aux interfaces nous avons mené une étude des propriétés des multicouches en fonction des paramètres de dépôt. Nous présentons en figure 23 les spectres de réflectométrie X rasants mesurés sur des empilements Cr/Sc déposés avec différentes pressions d'argon, de 0,7 mTorr à 5 mTorr. Tous les empilements sont réalisés avec une période voisine de 4 nm et un nombre de périodes égal à 60. Pour une pression de 5 mTorr, seul le premier ordre de Bragg, notablement élargi, est visible sur le spectre. Ceci indique une dégradation importante de la périodicité de la

multicouche, sans doute lié à une augmentation de rugosité interfaciale. Pour les trois pressions plus faibles, nous avons ajusté les courbes expérimentales à l'aide des paramètres donnés dans le tableau 7.

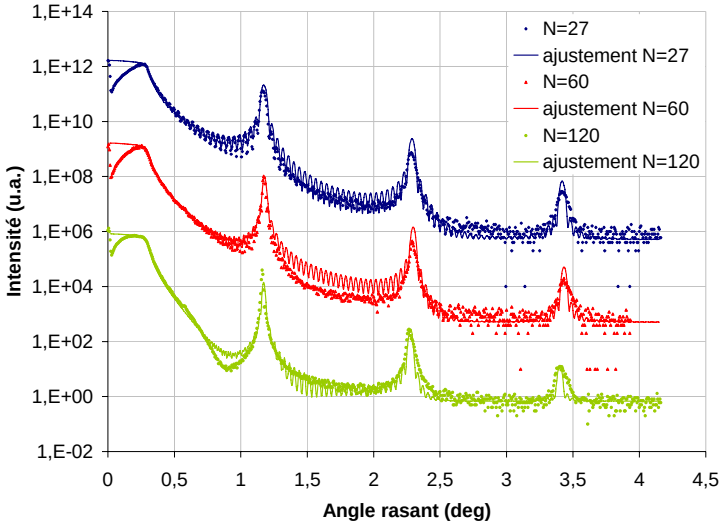


Figure 22 : Courbes de réflectométrie des rayons X en incidence rasante (points) avec leurs ajustements (trait), pour trois échantillons ayant un nombre de périodes différent, et pour une pression de dépôt de 2 mTorr. Les trois courbes ont été décalées pour plus de lisibilité.[Hardouin07]

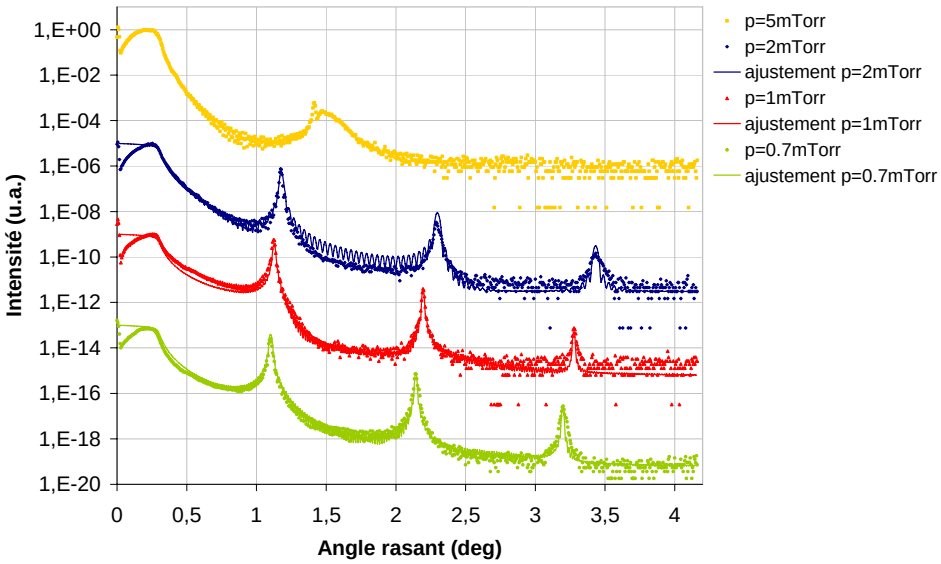


Figure 23: Courbes de réflectométrie des rayons X en incidence rasante expérimentales (points), et leurs ajustements (lignes), pour des échantillons ayant été déposés à différentes pressions. Les courbes ont été décalées pour plus de lisibilité.[Hardouin07]

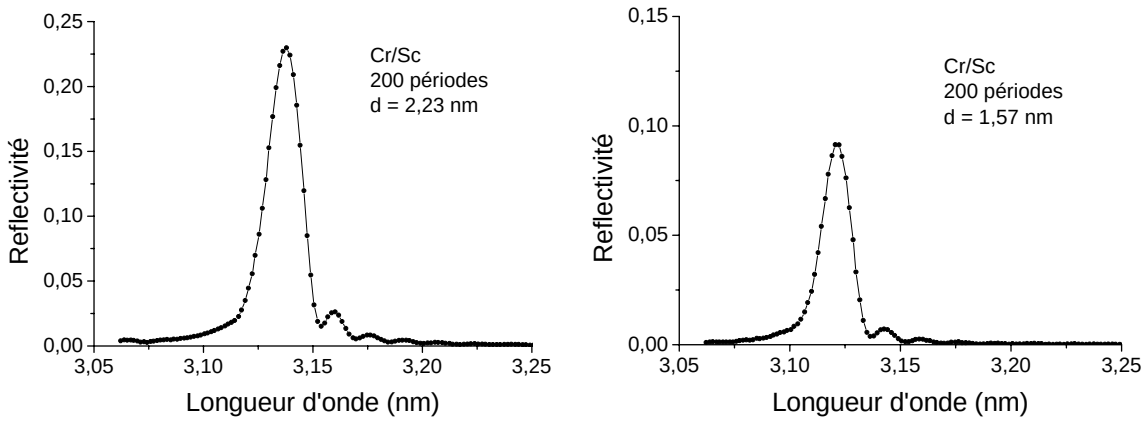
Nous pouvons noter une diminution importante de la rugosité interfaciale déduite de ces ajustements (σ_{RX}) lorsque la pression diminue. Cet effet est confirmé par des mesures de microscopie à force atomique qui montre que la rugosité de surface de l'empilement passe de 1 nm à 0,3 nm lorsque la pression diminue de 2 mTorr à 0,7 mTorr. La réflectivité à

λ=3,16nm (raie Kα de l'azote) de ces trois empilements a également été mesurée sur rayonnement synchrotron, pour des angles d'incidence voisins de 67°. Les résultats, synthétisés dans le tableau 7, indiquent que l'optimisation de la pression de dépôt a permis d'augmenter d'un facteur 3 le pouvoir réflecteur de ces empilements. La réflectivité expérimentale atteint ainsi 80% de la réflectivité théorique attendue.

Tableau 7: Récapitulatifs des paramètres et résultats obtenus sur les multicouches Cr/Sc ayant été déposées à différentes pressions.

Echantillon	*d* (nm)	*N*	*p* (mTorr)	*R* (%)	R/R_{th}	σ_{RX} (nm)	σ_{AFM} (nm)
MP04217	3.88	60	2	12.8	0.28	1.4	1.0
MP0515	4.05	60	1	33.7	0.73	0.5	-
MP0512	4.16	60	0.7	37.3	0.80	0.45	0.3

Les paramètres optimaux déduits de cette étude ont permis de réaliser également des multicouches Cr/Sc fonctionnant à incidence plus faible, c'est-à-dire ayant des périodes plus faibles. Plus l'incidence diminue, plus le nombre de périodes nécessaire augmente (ce qui risque d'augmenter la rugosité cumulée) et plus l'effet de la rugosité d'interface sur la réflectivité devient important. Ainsi un empilement de 200 périodes d'épaisseur 1,57 nm est nécessaire pour réaliser un miroir fonctionnant à une longueur d'onde de 3,12 nm sous 15° d'incidence. La figure 24 montre les réflectivités expérimentales obtenues pour des miroirs Cr/Sc optimisés pour des incidences de 45° et 15°.



(a) *(b)*

Figure 24: Réflectivités mesurées sur des miroirs Cr/Sc optimisés pour des incidences de 45° (a) et 15° (b).

Ces empilements Cr/Sc ont été développés initialement dans le cadre de la thèse d'Aurélie Hardouin en collaboration avec la société XENOCS, dans le but de réaliser des

miroirs analyseurs pour l'analyse par microsonde électronique (voir paragraphe 4.5.3). Ils ont également été appliqués dans deux autres domaines : comme diagnostic d'imagerie de faisceau en sortie d'onduleur sur le synchrotron SOLEIL[Desjardins] et comme monochromateur pour la spectroscopie d'émission X.[LeGuen]

4.2.2 Miroirs multicouches Sc/Si pour la gamme spectrale 40-50 nm

L'intérêt des multicouches à base de scandium pour les plus grandes longueurs d'onde du spectre XUV a été démontré en 1997 par Uspenskii et col.[Uspenskii97, Uspenskii00] Leurs premiers articles sur le sujet indiquaient un pouvoir réflecteur théorique supérieur à 75 % pour des multicouches Sc/Si à 36 nm de longueur d'onde, *i.e.* juste après le seuil d'absorption supposé du scandium. Les mesures d'indices du scandium publiées en 2004 par ces mêmes auteurs montrent pourtant que ce matériau devient peu absorbant uniquement après 40 nm, et non pas après 36 nm comme prévu par les tables de Henke utilisées dans l'étude précédente.[Uspenskii04] La figure 25 montre la réflectivité maximale théorique que l'on peut obtenir avec une multicouche Sc/Si en fonction de la longueur d'onde, en utilisant les indices tabulés de Henke et d'Uspenskii respectivement. Les premiers prédisent un maximum de 75% vers 36 nm alors que les seconds donnent un maximum de 60 % autour de 45 nm.

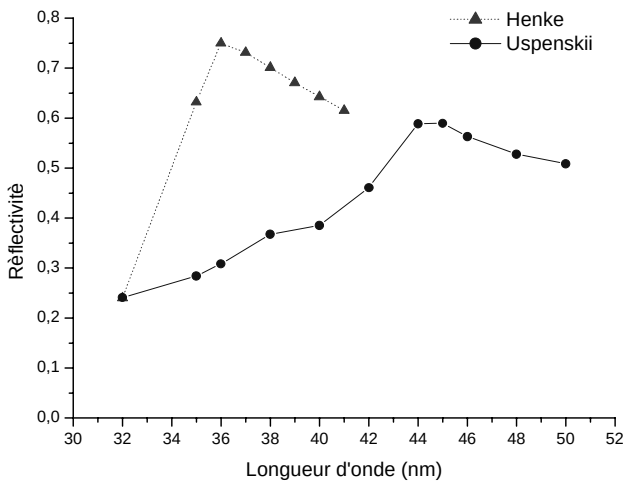


Figure 25 : Réflectivités théoriques des pics de Bragg en fonction de la longueur d'onde calculées à partir des indices de Henke (triangles) et des indices d'Uspenskii (ronds)

Un premier résultat important de notre étude a été de valider expérimentalement les indices d'Uspenskii par des mesures de spectres de réflectivité à différentes longueurs d'onde. Afin de limiter les paramètres ajustables, nous avons choisi d'étudier le même empilement multicouche à quatre angles d'incidence différents. Les résultats, représentés sur la figure 26, indiquent clairement que le maximum de réflectivité est obtenu lorsque le pic est centré vers 45 nm, en accord avec les indices d'Uspenskii. De plus, la forme des spectres est très bien

reproduite par le calcul utilisant les indices d'Uspenskii. Dans ces calculs, nous avons pris en compte une couche d'oxyde natif en surface de la dernière couche de silicium. D'autres imperfections, non prises en compte peuvent expliquer l'écart restant entre la théorie et la mesure.

Une équipe du Fraunhofer IOF[16] à Jena a également mené une étude expérimentale sur les empilements Cr/Sc et a trouvé un maximum de réflectivité autour de 45 nm, en accord avec les indices d'Uspenskii.[Yulin04] Depuis, les données mesurées par Uspenskii ont été incorporées aux tables d'indices du CXRO[17] (tables de Henke remises à jour) qui fait figure de référence internationale.[CXRO]

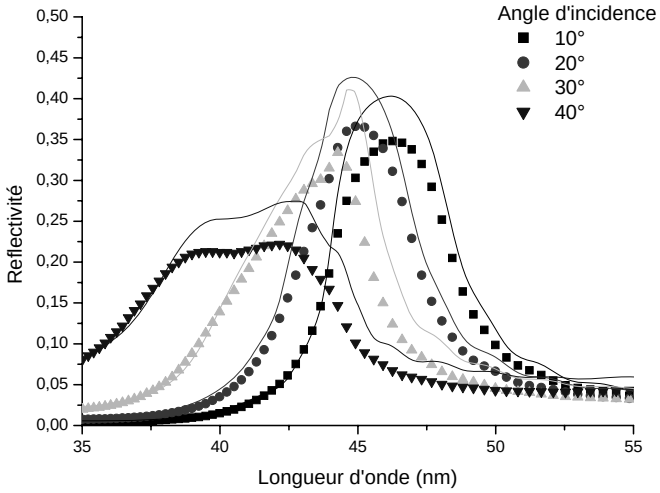


Figure 26 : Réflectivité expérimentale (points) et réflectivité calculée (traits) utilisant l'indice du scandium tabulé par Uspenskii d'une multicouche Sc/Si en fonction de la longueur d'onde pour quatre angles d'incidence.

Nous nous sommes également attachés à caractériser les défauts présents dans les empilements Sc/Si et leur influence sur les performances optiques. Les principaux résultats sont résumés dans le tableau 8. Les défauts d'interfaces et les impuretés en faible quantité dans le scandium ont un effet négligeable sur la réflectivité. Par contre la contamination d'argon dans les couches de silicium induit une perte de réflectivité de 16 %. Le principal défaut responsable de la perte de réflectivité par rapport à la théorie est en réalité l'oxydation native de la couche de silicium en surface de l'empilement.

L'effet de l'oxydation de surface peut en fait être atténué si l'on optimise correctement l'épaisseur de la dernière couche. En modifiant l'épaisseur de la dernière couche, on peut en effet choisir l'amplitude du champ électrique (lié à l'onde stationnaire créée dans

[16] Fraunhofer Institute for Applied Optics and Precision Engineering
[17] Center for X-Rays Optics.

l'empilement) en surface. Si l'on s'arrange pour que cette amplitude soit minimale, alors l'absorption dans la couche d'oxyde de surface sera minimisée et la réflectivité maximisée. Les simulations prédisent que la réflectivité sera maximum si l'on termine l'empilement par une couche de scandium protégée par une fine couche de silicium. Cette couche doit cependant être suffisamment épaisse pour protéger le scandium de l'oxydation. Nous avons déposé et caractérisé quatre multicouches Sc/Si avec une épaisseur différente de silicium en surface, de 12,8 nm (l'épaisseur nominale) jusqu'à 3,2 nm.

Tableau 8 : Les défauts présents dans les empilements Sc/Si et leur influence sur la réflectivité

Matériau (méthode de caractérisation)	Paramètres mesurés (tabulés)	Effet sur la réflectivité
Sc (RBS)	Densité = 2.8 g cm^{-3} (2.98 g cm^{-3}) Fe < 430 ppm Ta < 1000 ppm	Faible
Si (RBS)	Densité = 2.1 g cm^{-3} (2.18 g cm^{-3}) Ar : 4 %	Baisse de 16% en relatif
Interfaces ScSi (GRX, EXES)	Composition : Épaisseur = 1.5 à 2 nm	Faible
Oxydation native de la dernière couche de silicium	Epaisseur supposée : 1,5 à 2 nm	Baisse d'environ 30% en relatif

Les spectres de réflectivité mesurés sur rayonnement synchrotron sont superposés sur la figure 27 et les valeurs des réflectivités et des bandes passantes obtenues sont données dans le tableau 9. Comme prévu par la simulation, la réflectivité augmente de manière significative lorsque l'épaisseur de la dernière couche de silicium diminue. De plus cette augmentation de réflectivité est accompagnée d'une légère diminution de la bande passante à mi-hauteur.

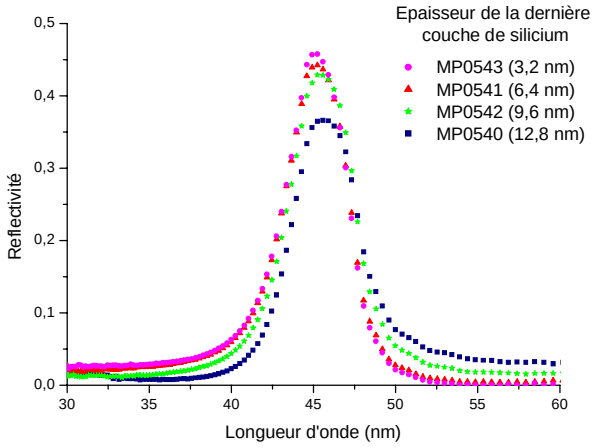


Figure 27 : Réflectivités expérimentales des multicouches Sc/Si pour différentes épaisseurs de silicium en surface : 3,2 nm, 6,4 nm, 9,6 nm et 12,8 nm.

Tableau 9 : Réflectivités et bandes passantes mesurées en fonction de l'épaisseur de la couche de surface en silicium.

Epaisseur couche de surface	Réflectivité à λ=45,6 nm	Bande passante
12,8 nm	37%	4,7 nm
9,6 nm	43%	4,6 nm
6,4 nm	44%	4,5 nm
3,2 nm	46%	4,4 nm

Initialement développés pour des applications en imagerie solaire[18] dans le cadre de la mission SDO[Rochus],[19] les empilements Sc/Si présentent aussi un intérêt particulier pour la sélection d'harmoniques d'ordre élevé. Des miroirs ont ainsi été optimisés pour la sélection des harmoniques H17, H19 et H21 (respectivement à λ=47 nm, 42 nm et 38 nm). Ces miroirs permettent d'obtenir une réjection des harmoniques voisines avec un facteur proche de 10 et ainsi d'isoler efficacement une harmonique parmi le peigne généré par la source.

4.2.3 Miroirs multicouches à 3 matériaux par période : l'effet tri matériau

Différentes méthodes ont été proposées par le passé pour optimiser la réflectivité d'un empilement multicouche constitué de matériaux absorbants. Dès 1980, Carniglia et Apfel proposèrent d'utiliser une structure quasi-périodique dans laquelle la période d est constante mais l'épaisseur du matériau le plus absorbant e_{abs} varie.[Carniglia] Près de la surface, e_{abs} est faible afin de minimiser l'absorption et près du substrat e_{abs} est élevé (approximativement d/2) pour améliorer la réflectivité. Plus récemment, Singh et Braat[Singh] ont repris cette idée en l'appliquant à des structures composées de 3 ou 4 matériaux différents afin d'améliorer la réflectivité à 13,4 nm de longueur d'onde. Naturellement, les matériaux les plus absorbants sont principalement présents près du substrat et les moins absorbants près de la surface. La réflectivité théorique atteint ainsi 0,781 à comparer à 0,757 pour une multicouche périodique à 2 matériaux. Le gain de réflectivité n'est donc que de 3% en relatif.

Concernant les plus grandes longueurs d'onde (supérieure à 50 nm), Larruquert a développé une théorie sur les empilements multi matériaux et établi une règle de sélection pour les matériaux.[Larruquert01] Malheureusement, cette théorie n'est valide que pour les matériaux fortement absorbants, et cette hypothèse n'est généralement pas vérifiée en dessous de 50 nm de longueur d'onde. Larruquert a néanmoins proposé plusieurs exemples d'empilement multi périodiques dans le domaine EUV (à 30,4 nm et 50 nm) en utilisant ces

[18] Pour la raie Ne VII à 46,5 nm.
[19] Solar Dynamic Observatory

règles de sélection. En théorie, les structures proposées permettent d'augmenter significativement la réflectivité et ce dès l'ajout d'un troisième matériau.[Larruquert02] La seule étude expérimentale sur des structures multi matériaux avait été menée dans les années 1980 par Boher et col.[Boher] Cette étude concernait des empilements périodiques à 3 ou 4 matériaux pour des longueurs d'onde comprises entre 1,3 nm à 6,8 nm. Ces auteurs ont montré que même dans une structure périodique, l'ajout d'un troisième matériau apportait un gain substantiel de réflectivité. Ils ont également proposé des critères pour le choix des matériaux.

Dans le cadre de la thèse de Julien Gautier, nous nous sommes intéressé à l'étude théorique et expérimentale des empilements périodiques à 3 matériaux afin d'augmenter la réflectivité dans la gamme spectrale 20 à 40 nm.[Gautier05c] Une étude approfondie de tous les empilements à trois matériaux que l'on peut générer à partir de 4 matériaux d'intérêt (Mo, Si, B_4C et Si3N4) nous a permis de montrer que dans tous les cas, l'ajout d'un troisième matériau permet d'augmenter la réflectivité, si la séquence des matériaux est dans le bon ordre. Les principaux résultats des simulations sont présentés dans le tableau 10.

Tableau 10 : Réflectivité à λ=32 nm et les épaisseurs optimales des couches.

Multicouches à trois matériaux				**Multicouches Standard**		
Structure	Epaisseurs (nm)	R (%)	Augmentation relative	Structure	Epaisseurs (nm)	R (%)
B_4C/Mo/Si	4,1/2,2/11,3	42,0	23,0	B_4C/Si	6,1/11,6	34,1
Si_3N_4/Mo/Si	2,7/2,5/12,3	36,2	18,4	Mo/Si	3,2/14,2	30,5
B_4C/ Si_3N_4/Si	4,4/1,8/11,5	34,9	2,3	B_4C/Si	6,1/11,6	34,1
B_4C/Mo/ Si_3N_4	5,9/6,2/6,6	16,1	28,8	B_4C/Mo	7,0/8,9	12,5

La meilleure combinaison, B_4C/Mo/Si permet d'augmenter la réflectivité de 23% en relatif par rapport à une structure à 2 matériaux. Concernant le choix des matériaux, il est clair qu'il faut utiliser les matériaux qui ont le plus grand contraste d'indice et cela est en accord avec les règles de sélections établies par Boher et celles de Larruquert. Par contre, concernant l'ordre des matériaux, les critères proposés par ces deux auteurs ne s'appliquent pas à tous les cas et la simulation numérique reste donc le seul moyen d'optimiser correctement ces structures.[Gautier05a]

Les résultats de simulation présentés sur la figure 28 montrent que la structure B_4C/Mo/Si apporte un gain important de réflectivité par rapport aux structures à deux matériaux (B_4C/Si ou Mo/Si) sur une large gamme spectrale, de 20 à 40 nm. Ces résultats

prometteurs nous ont poussés à mener une étude expérimentale détaillée sur ces empilements à trois matériaux par période $B_4C/Mo/Si$. Un grand nombre de multicouches ont été réalisées par pulvérisation cathodique magnétron et par pulvérisation par faisceau d'ions, puis caractérisées sur rayonnement synchrotron.[Gautier05c] Nous avons superposé sur la figure 29 les meilleurs résultats obtenus en pulvérisation cathodique magnétron pour des multicouches B_4C/Si et $B_4C/Mo/Si$ autour de 30 nm et autour de 40 nm. Ces résultats confirment expérimentalement le gain apporté par les structures tri matériaux.

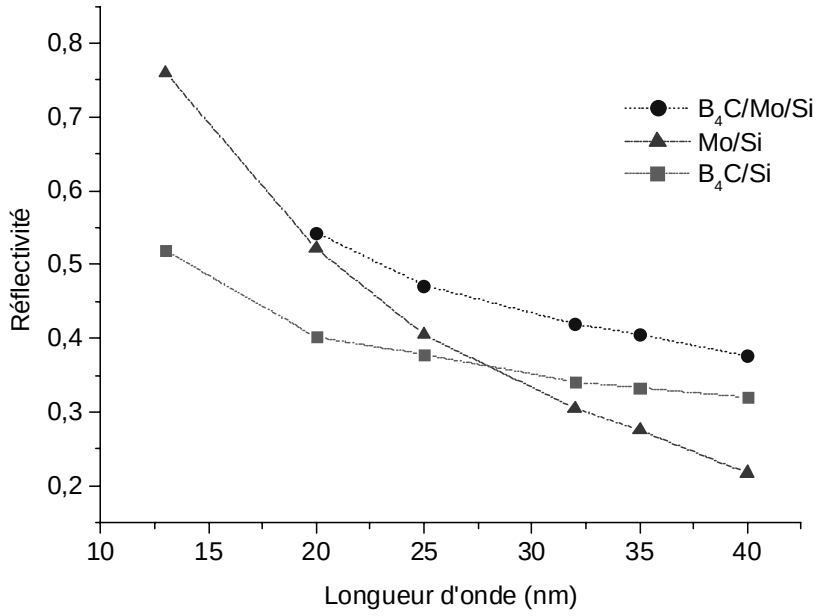
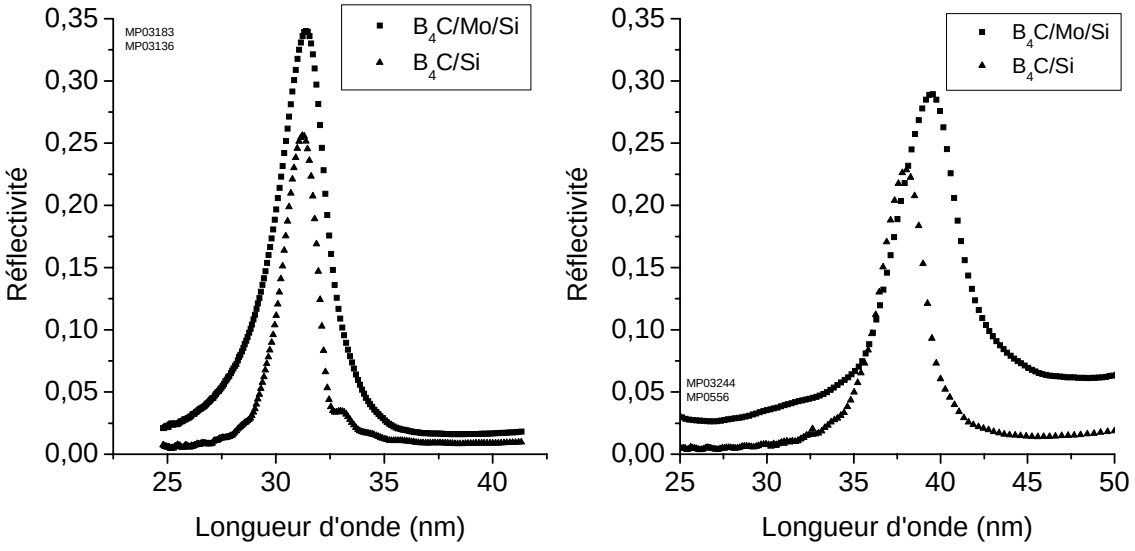


Figure 28 : Réflectivité en fonction de la longueur d'onde pour les multicouches Mo/Si (triangle), B_4C/Si (carré) et $B_4C/Mo/Si$ (rond).



(a) *(b)*

Figure 29 : Comparaison des réflectivités mesurées sur des miroirs multicouches $B_4C/Mo/Si$ et B_4C/Si autour de 32 nm (a) et autour de 40 nm (b).

La figure 30 montre la courbe théorique issue du modèle initial utilisé pour optimiser la structure ainsi que la mesure sur rayonnement synchrotron de ce miroir. On peut noter une différence notable sur la réflectivité et la bande passante du pic de Bragg. La réflectivité expérimentale reste en deçà des valeurs théoriques (34% mesuré à 32 nm contre 42% en théorie) et la bande passante est plus étroite. Afin d'expliquer ces différences, des mesures par microanalyse nucléaire et rétrodiffusion coulombienne ont été effectuées sur les trois matériaux constituant l'empilement afin de déterminer leur composition et leur densité. Les résultats synthétisés dans le tableau 11 montrent que les densités du Mo et du Si sont proches des valeurs tabulées. Les principaux défauts proviennent du B_4C qui est sous dense et sous stoechiométrique. Une contamination de 3 à 4 % d'argon est également présente dans les couches de Si et de B_4C. L'influence de ces différents défauts a ensuite été étudiée par simulation. La sous stœchiométrie du B_4C et la contamination en argon ont un effet négligeable sur le spectre de réflectivité autour de 32 nm. En revanche, la baisse de densité du B_4C permet d'expliquer la chute du pouvoir réflecteur ainsi que la diminution de la bande passante.

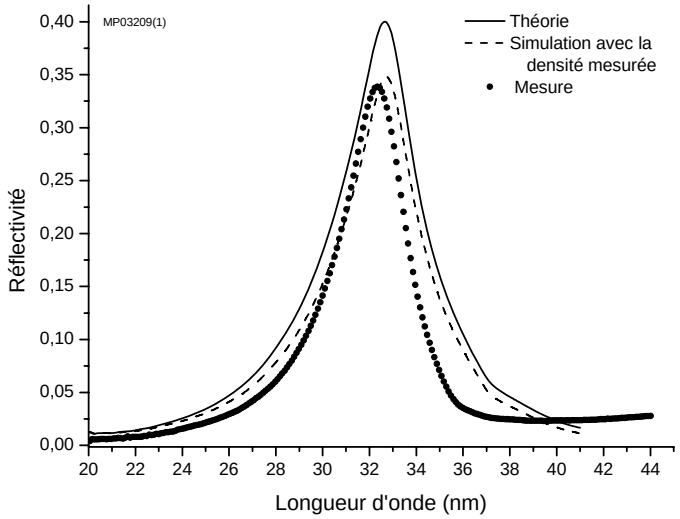


Figure 30 : Spectre expérimental (points) et théorique (trait plein) d'un empilement de 15 périodes de $B_4C/Mo/Si$ (4,9nm/2,7nm/10,8nm). La simulation réalisée en utilisant la densité mesurée du B_4C à la place de la densité théorique est également tracée (trait pointillé).

Comme le montre la figure 30, la courbe simulée en prenant en compte uniquement la baisse de densité de B_4C est très proche de la courbe mesurée. Les écarts qui subsistent pour les longueurs d'onde supérieures à 32 nm sont en grande partie imputables à la

méconnaissance des constantes optiques des matériaux en couches minces dans cette région spectrale, notamment pour le molybdène.

Tableau 11 : Résultats des analyses RBS&NRA réalisées sur les matériaux en couches minces.

	Molybdène	Silicium	Carbure de Bore
Densité mesurée	10,1 ±0,1 g.cm^{-3}	2,1 ±0,1 g.cm^{-3}	2,0 ±0,2 g.cm^{-3}
Densité tabulée	10,2 g.cm^{-3}	2,18 g.cm^{-3}	2,52 g.cm^{-3}
Remarques	Pas d'impureté détectée	Argon : 4%	Stœchiométrie : 2,9 Argon : 3%

La première application de ces nouvelles structures a été la réalisation du coronographe à 30,4 nm pour la mission fusée HERSCHEL (lancée le 14 septembre 2009). La réflectivité élevée de ces multicouches (par rapport aux multicouches Mo/Si utilisé pour la mission STEREO par exemple) était en effet indispensable pour ce type d'instrument car le flux de photons est bien plus faible (environ trois ordres de grandeur) que dans un télescope classique. De plus, nous verrons dans les paragraphes suivants que ces structures présentent un intérêt tout particulier pour réaliser des miroirs à large bande passante.

Il est important de souligner que cet effet tri matériau n'est pas limité a priori au cas de l'empilement B_4C/Mo/Si ni à cette gamme de longueur d'onde. Il est possible, en théorie, de trouver d'autres combinaisons de matériaux pour lesquelles cet effet existe.

A notre connaissance, seuls deux autres exemples ont été rapportés dans la littérature jusqu'à ce jour. Le premier concerne l'ajout de Cr dans les multicouches Sc/Si et le second l'ajout de Sc dans les multicouches Mg/SiC. Dans le premier cas, S. Yulin et al. ont mesuré une réflectivité de 0,56 à 44,7nm pour une multicouche Sc/Si/Cr, contre 0,48 pour une multicouche Sc/Si sans Cr.[Yulin04] Ils ne donnent cependant aucune explication de cet effet dans leur article. Plus récemment, dans son manuscrit de thèse daté du printemps 2009, A. Aquila du CXRO montre que l'ajout de Sc dans les multicouches Mg/SiC permet d'augmenter sensiblement la réflectivité. Il a par exemple mesuré une réflectivité de 0,48 à 37 nm pour Mg/Sc/SiC contre 0,42 pour Mg/SiC.[Aquila09]

De notre coté, nous avons continué à explorer cet effet tri matériau sur différentes structures multicouches, notamment les empilements à base d'aluminium pour la gamme 17 à 40 nm.[Meltchakov]

4.3 Etude de la stabilité des miroirs multicouches

Que ce soit pour des applications spatiales ou pour d'autres applications industrielles (lithographie EUV, analyse X, ...) la durée de vie des empilements multicouches constitue un point clef qu'il est indispensable d'évaluer et d'optimiser en fonction de l'environnement d'utilisation. La stabilité temporelle et la stabilité thermique des empilements multicouches sont donc deux grandeurs que nous nous sommes attachés à étudier pour la plupart des empilements que nous avons réalisés. L'optimisation de ces deux propriétés essentielles passe par l'étude des couches de protection et par l'étude de couches « barrières », respectivement.

Dans les paragraphes suivants, nous donnons une synthèse des principaux résultats obtenus au cours de ces dix dernières années pour différents types d'empilements multicouches.

4.3.1 Stabilité temporelle et couches de protection

Une difficulté majeure pour mener à bien ce type d'étude réside dans la reproductibilité des mesures réalisées. Cette difficulté est accrue par la nécessité que nous avons eu de changer de source synchrotron suite à la fermeture de SuperAco fin 2003. Nous avons ainsi été amené à utiliser régulièrement la ligne BEAR du synchrotron Elettra et également la ligne de Métrologie du synchrotron de Berkeley (ALS 6.3.2) pour mesurer des optiques spécifiques (voir 4.4.3). Les procédures d'alignement des échantillons diffèrent d'une série de mesure à une autre suivant la ligne synchrotron utilisée et suivant son évolution. Or, ces procédures peuvent engendrer une erreur systématique sur la mesure. Par ailleurs, des problèmes de dérive à long terme des valeurs de réflectivité mesurées ont été observés sur certaines lignes synchrotron.

Dans le cadre de la préparation des télescopes EUV de la mission STEREO, nous avons étudié la stabilité temporelle de la réflectivité sur plusieurs échantillons pendant près de 2 années. Nous avons ainsi pu mettre en évidence un problème de dérive lente dans les mesures sur la ligne SA62 de SuperAco. Cette dérive semble liée à un problème de pollution du réseau servant de monochromateur. En effet, nous avons pu constater qu'après un nettoyage de celui-ci, la réflectivité remontait pour tous nos échantillons. On voit un exemple de cet effet sur la courbe du haut de la figure 31, qui laisse présumer une dérive cyclique avec une période d'une année. Malgré ce problème de mesure, nous avons pu dégager plusieurs résultats importants concernant la stabilité des miroirs multicouches étudiés. Tout d'abord, nous pouvons constater que la réflectivité de l'empilement Mo/Si reste stable sur 500 jours à +-10%. De plus, nous avons comparé des empilements Mo/Si terminés soit par de l'oxyde

natif de la dernière couche de silicium, soit par une couche de B_4C. Nous pouvons voir sur la figure 31 que l'ajout d'une couche de protection en B_4C n'améliore pas la stabilité de manière significative. Enfin, nous avons vérifié la stabilité temporelle des empilements B_4C/Si sur une durée de 250 jours.

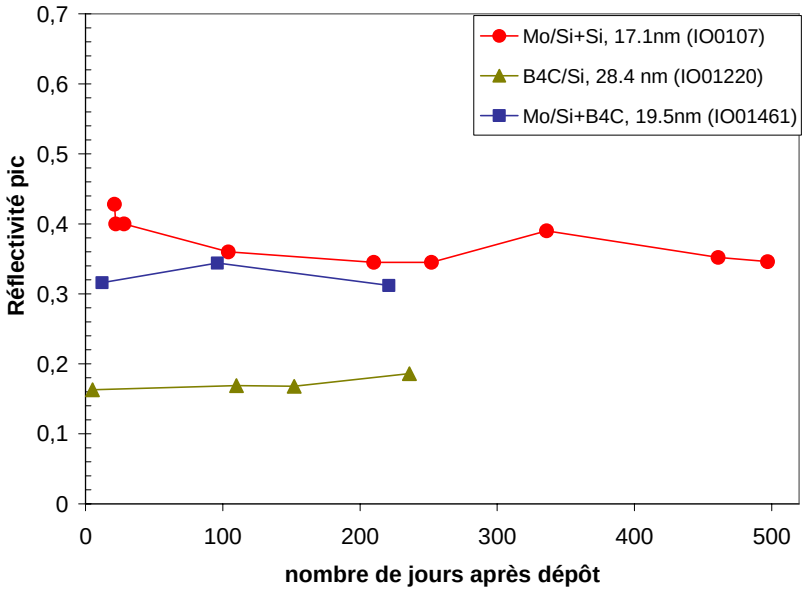


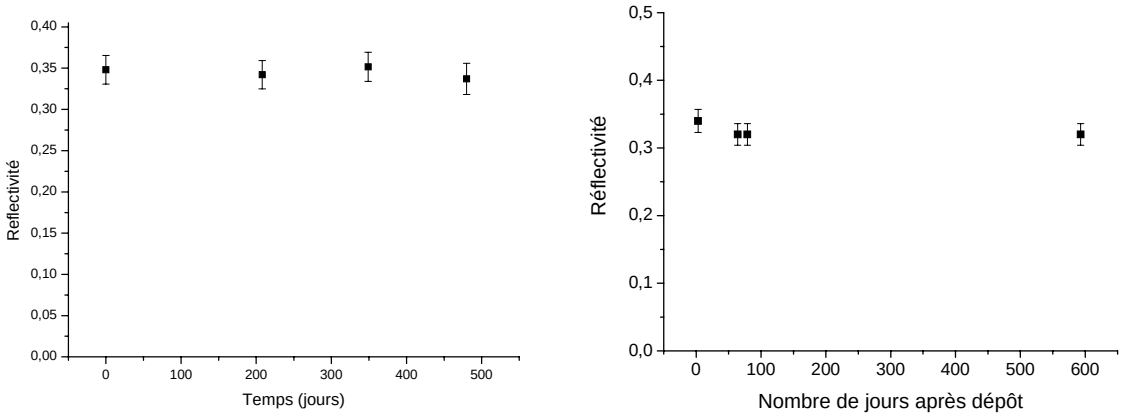
Figure 31: Evolution de la réflectivité pic de différentes multicouches en fonction du temps.

Dans la suite de nos études, nous avons mené de manière quasi systématique des études de stabilité temporelle sur tous les nouveaux couples de matériaux. Nous présentons ici trois exemples: Sc/Si, Cr/Sc et B_4C/Mo/Si.

Nous avons mesuré à plusieurs reprises la réflectivité des multicouches Sc/Si dans les mêmes conditions expérimentales (même ligne synchrotron, mêmes paramètres de faisceau) sur une période de 500 jours. Nous avons tracé sur la figure 32a la réflectivité pic en fonction du temps pour une multicouche Sc/Si. Ces résultats ont mis en évidence la bonne stabilité temporelle de ce type d'empilement malgré la présence du scandium, matériau fortement réactif.

Les multicouches Cr/Sc semblent relativement stables sur une durée supérieure à 2 ans, mais présentent une légère décroissance de réflectivité. Les mesures en réflectométrie X rasant confirment cette légère évolution que nous pouvons attribuer au développement de l'oxydation de surface de l'empilement. En effet, contrairement à l'oxyde de silicium, l'oxyde de chrome n'est pas passivant. Il serait donc judicieux, pour des applications nécessitant une stabilité à long terme, de protéger les empilements Cr/Sc par une couche de passivation (SiO2 ou B_4C par exemple).

Enfin, les multicouches $B_4C/Mo/Si$ présentent une très bonne stabilité temporelle. La figure 32b) indique qu'aux précisions de mesures près, aucune variation de réflectivité n'est observée sur une période de plus de 600 jours. Ces résultats confirment ce que nous avions mis en évidence sur des durées plus courtes lors des études de STEREO : du point de vue de la stabilité temporelle, le carbure de bore peut être utilisé comme couche de protection des empilements multicouches.



(a) *(b)*

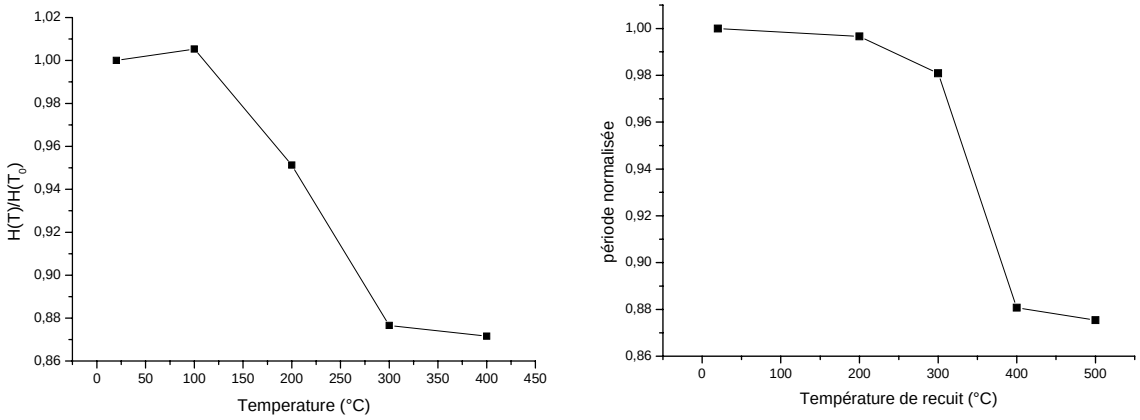
Figure 32 : Evolution temporelle de la réflectivité d'une multicouche Sc/Si (a) et d'une multicouche $B_4C/Mo/Si$ (b). Les mesures de réflectivité ont été réalisées sous un angle d'incidence de 10° sur rayonnement synchrotron (SuperAco et Elettra).

Il convient de souligner que le problème d'oxydation de la surface de l'empilement n'est pas l'unique facteur à prendre en compte pour assurer la stabilité temporelle d'un empilement multicouche. Des problèmes de décollement, liés à l'évolution des contraintes mécaniques ou de l'adhérence de l'empilement, peuvent engendrer une perte totale de réflectivité. Nous avons ainsi pu constater que des dépôts présentant de fortes contraintes, comme par exemple les multicouches B_4C/Si, ont tendance à se décoller dans les jours qui suivent le dépôt si l'épaisseur cumulée de carbure de bore est trop élevée. Dans d'autres cas, par exemple pour les multicouches Si/SiN, le décollement ne se produit qu'au bout de plusieurs mois. Il est donc important d'optimiser les paramètres de dépôt pour minimiser les contraintes mécaniques induites par le dépôt.

4.3.2 Stabilité thermique et couches « barrières »

L'étude de la stabilité des empilements multicouches sous recuit fait généralement apparaître un seuil de dégradation de l'empilement qui peut être causé par différents facteurs. Dans certains systèmes, cette dégradation est révélée par une diminution de la période de la multicouche. On parle alors de "contraction de période". Ce phénomène a été démontré dans

le cas des multicouches Mo/Si et Sc/Si. La figure 33 présente l'évolution de la période pour ces deux multicouches en fonction de la température de recuit. Un seuil apparaît à 200°C pour Mo/Si et dès 100°C pour Sc/Si. Dans ces deux cas, des études par EXES menées en collaboration avec l'équipe de Philippe Jonnard du LCPMR[20] ont permis de mettre en évidence l'existence de composés aux interfaces qui évoluent avec la température : à partir du seuil, l'épaisseur de la couche d'interface augmente.[Maury07] A plus haute température, on peut aussi assister à des changements de phase dans les couches d'interfaces.



(a) *(b)*

Figure 33 : Evolution de la période normalisée des multicouches Sc/Si (a) et Mo/Si (b) en fonction de la température de recuit pour un recuit rapide (RTA).

Pour certaines applications, ces seuils de dégradation peuvent s'avérer trop bas et il est alors nécessaire d'améliorer la stabilité thermique des empilements. Cela peut être fait en ajoutant des couches très fines (quelques dixièmes de nanomètres) d'un troisième matériau aux interfaces. Il a été montré que les matériaux carbonés tels que a-C, SiC ou B_4C permettent d'améliorer la stabilité thermique dans Mo/Si en conservant des réflectivités élevées.[Takenaka98, Bajt02]

Toujours en collaboration avec l'équipe de Philippe Jonnard, nous avons développé une méthodologie reposant sur deux méthodes complémentaires : la spectroscopie d'émission X (EXES) qui nous renseigne sur l'environnement chimique aux interfaces et la réflectométrie X qui donne le profil d'indice optique dans la multicouche. L'influence des couches barrières en B_4C dans les multicouches Mo/Si et Sc/Si ainsi que la stabilité en température de ces interfaces ont aussi été étudiées.[Maury06]

Nous présentons ici un aperçu des performances obtenues grâce aux couches barrières sur les systèmes Sc/Si d'une part et Mo/Si d'autre part. Concernant le Sc/Si, nous avons étudié

[20] Laboratoire de Chimie Physique – Matière et Rayonnement (Université Pierre et Marie Curie, Paris)

l'influence du matériau barrière (B_4C, SiN ou ScN) et de son épaisseur sur la stabilité thermique et sur la réflectivité de l'empilement.[Gautier05b] La figure 34 montre les réflectivités mesurées sur des multicouches Si/Sc et Si/ScN/Sc/ScN avant recuit et après un ou deux recuit(s) in situ à 280°C. Du fait de la baisse de réflectivité pic et du décalage du pic de Bragg, la multicouche sans barrière a perdu près de 90% de son pouvoir réflecteur à 46 nm après les 2 recuits. La multicouche avec barrière en ScN conserve environ 70% de sa réflectivité initiale à 46 nm.

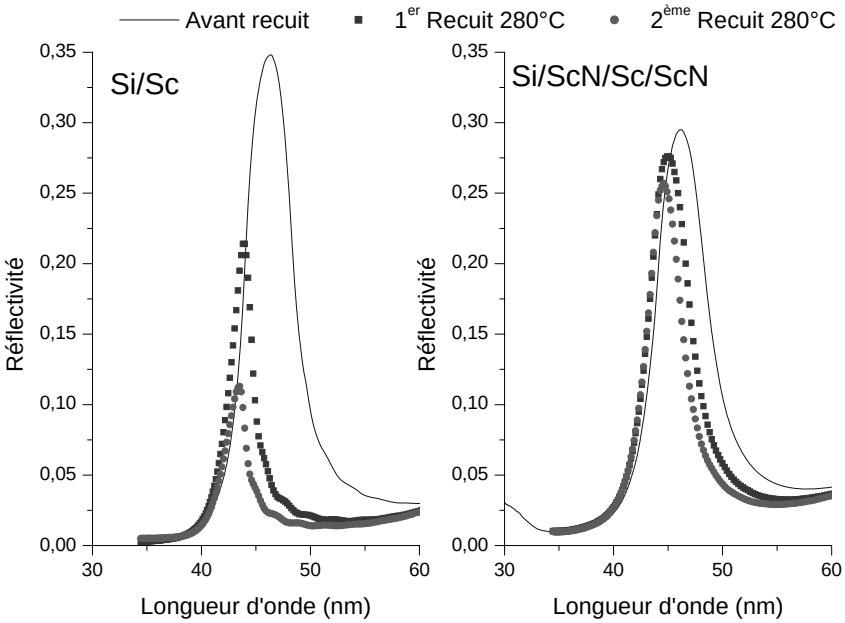
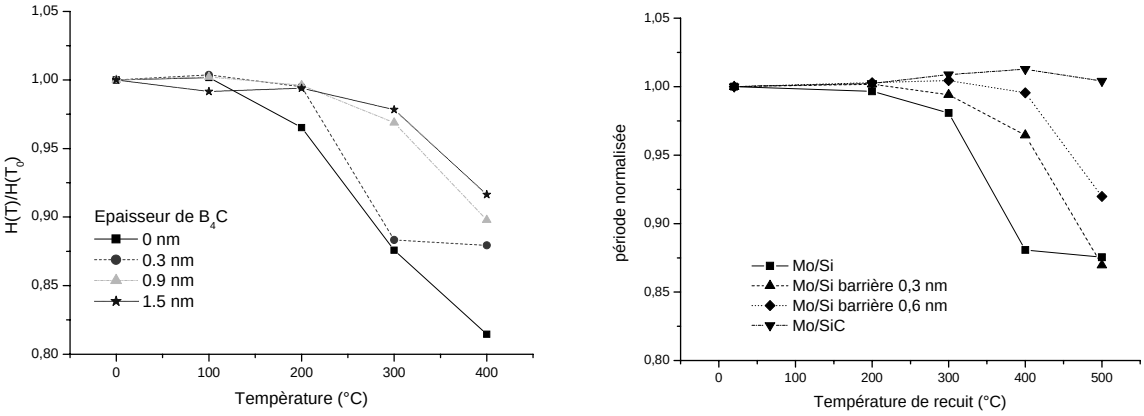


Figure 34: Réflectivités expérimentales d'une multicouche Si/Sc (à droite) et d'une multicouche Si/ScN/Sc/ScN (à gauche). Les mesures on été effectuées sur la ligne BEAR avant et après un ou deux recuits in-situ à 280°C



(a) *(b)*

Figure 35 : Evolution en fonction de la température du rapport de la période de l'échantillon en recuit classique à la période de l'échantillon non recuit pour des multicouches Sc/B_4C/Si/B_4C (a) Mo/SiC/Si/SiC (b) avec différentes épaisseurs de couches barrières aux interfaces.

Nous avons comparé sur la figure 35, l'influence de l'épaisseur de la couche barrière dans les systèmes Sc/B_4C/Si/ B_4C et Mo/SiC/Si/SiC. Ces deux exemples montrent clairement que la stabilité thermique s'améliore lorsque l'épaisseur des couches barrières augmente. Cependant, la réflectivité théorique de l'empilement diminue avec l'ajout de couche barrière. Il est donc intéressant, si l'on veut obtenir une réflectivité maximale, de limiter l'épaisseur des couches barrières à la plus petite valeur acceptable. On peut facilement montrer par des simulations que l'ajout d'une couche barrière à une interface ou à l'autre n'a pas le même effet sur la réflectivité. En effet, le champ électrique correspondant à l'onde stationnaire sera généralement plus élevé à une interface qu'à l'autre. L'ajout d'un matériau barrière absorbant sera d'autant plus pénalisant que le champ électrique sera élevé. On peut donc avoir intérêt à optimiser indépendamment les épaisseurs de barrières aux deux interfaces. Par ailleurs, dans le cas des empilements Mo/Si, la nature dissymétrique des interfaces a été démontrée dans plusieurs publications.[Stearns, Bajt01] Là encore, on peut raisonnablement penser que l'épaisseur de barrière nécessaire pour améliorer la stabilité thermique soit différente suivant l'interface considérée.

Ces considérations ont motivé une étude sur les empilements Mo/Si avec des couches barrières dissymétriques menée dans le cadre de la thèse de Christophe Hecquet. L'objectif de cette étude en collaboration avec SAGEM DS était d'optimiser des revêtements à grande stabilité thermique et à fort pouvoir réflecteur pour les condenseurs utilisés en lithographie EUV. Un des principaux résultats est représenté sur la figure 36 où nous avons tracé la variation de période en fonction de la durée de recuit pour différentes épaisseurs de couches barrières aux deux interfaces. Ces résultats indiquent que pour garantir une stabilité thermique sur des longues durées, une épaisseur de couche barrière d'environ 1,2 nm est nécessaire à chaque interface. Notons que des résultats similaires ont été obtenu au Fraunhofer IOF à Jena en utilisant des couches de 0,8 nm de carbone aux interfaces.[Yulin06]

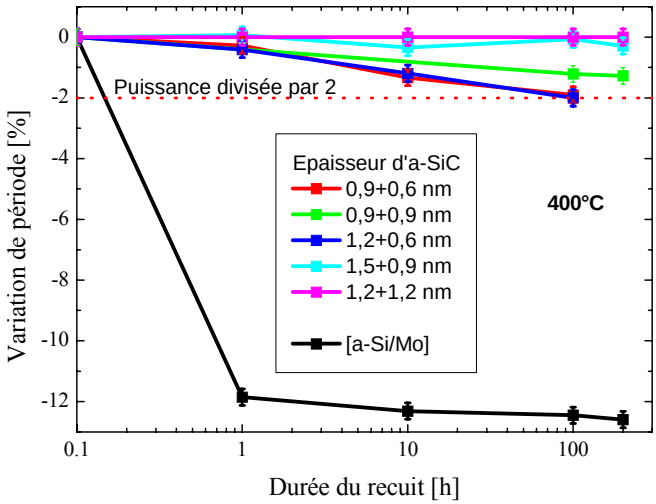


Figure 36 : Variation de la période des multicouches Mo/a-Si et Mo/a-SiC/Si/a-SiC en fonction de la durée du recuit à 400°C pour différentes épaisseurs de a-SiC aux interfaces.[Hecquet09b]

4.4 Miroirs à réponse spectrale spécifique

Une problématique commune à de nombreuses applications des miroirs XUV réside dans la réjection d'une longueur d'onde ou d'une bande de longueur d'onde spécifique. L'optimisation des facteurs de réjection d'un miroir nécessite une modification de la structure de l'empilement. La solution la plus simple consiste à optimiser le matériau et l'épaisseur de la dernière couche de l'empilement et éventuellement de l'avant dernière couche également. Une solution plus complexe, mais plus puissante, consiste à superposer deux multicouches périodiques. Nous allons décrire ici plusieurs exemples de structures que nous avons réalisées et caractérisées au cours de ces dernières années. Nous commencerons auparavant par rappeler quelques notions sur les revêtements antireflets.

4.4.1 Quelques rappels sur les traitements antireflets

Le traitement antireflet le plus simple consiste à ajouter sur la surface d'un matériau massif une couche mince transparente dont l'épaisseur va permettre de déphaser l'onde de 180° lors de la propagation aller-retour dans la couche mince (figure 37). On obtient alors, pour la longueur d'onde λ_0 à laquelle cette condition est réalisée, une extinction parfaite si l'indice de la couche mince est choisi de manière à équilibrer l'amplitude des réflexions aux deux interfaces. La première condition, sur l'épaisseur de la couche, s'écrit :

$$n_{AR}(\lambda_0)\, e_{AR} = \lambda_0/4 \qquad (4.1)$$

La seconde condition sur l'indice s'écrit :

$$n_{AR}(\lambda_0)^2 = n_v(\lambda_0)\, n_s(\lambda_0) = n_s(\lambda_0) \qquad (4.2)$$

Cette seconde condition est équivalente à dire que les coefficients de réflexion en amplitude aux deux interfaces ($r_{v,AR}$ et $r_{AR,s}$) doivent être égaux.

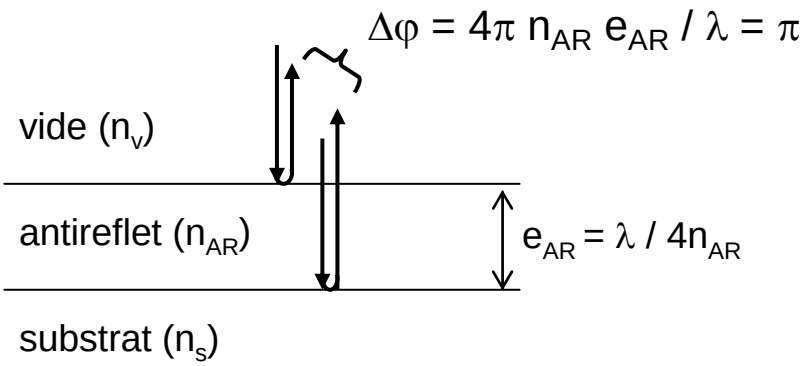


Figure 37 : Schéma d'un revêtement antireflet composé d'une couche mince transparente sur un substrat.

En réalité, si l'on ne respecte pas précisément les deux conditions précédentes, on n'obtiendra pas d'extinction parfaite de la réflectivité à λ_0 mais on conservera quand même un effet antireflet. Par exemple, si l'on considère des longueurs d'onde voisines de λ_0, le déphasage reste suffisant pour garder un effet antireflet efficace. Pour illustrer ceci, nous avons tracé sur la figure 38 le spectre de réflexion d'un substrat d'indice 4 recouvert d'une couche antireflet (AR) d'épaisseur 70 nm et d'indice 2 dans le domaine visible. L'épaisseur optique est alors de 140nm et à λ_0= 560 nm on obtient bien une réflectivité nulle. Cette couche AR permet en fait de diminuer notablement la réflectivité du substrat nu sur tout le domaine visible. Sur la plage 480 nm – 670 nm, qui correspond à un déphasage $\Delta\varphi$ compris entre 2,64 rad et 3,64 rad, on obtient une réduction de réflectivité d'un facteur supérieur à 10.

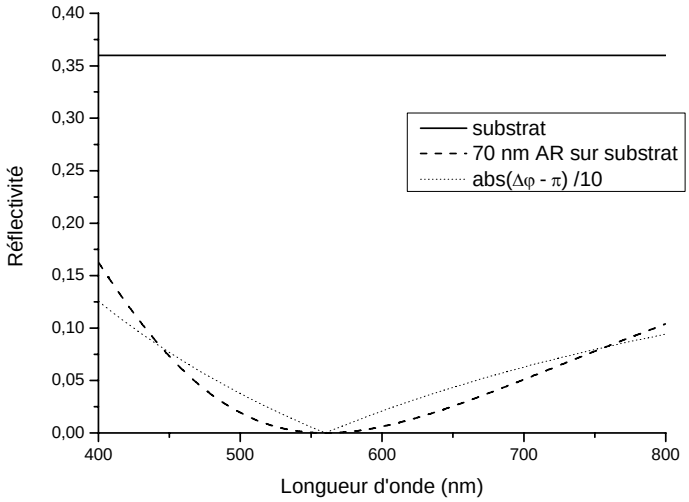


Figure 38 : Réflectivité calculée pour un substrat d'indice 4 revêtu ou non d'une couche antireflet (AR) d'indice 2 de 70nm d'épaisseur. L'écart à π du déphasage est également tracé pour information.

Il est a priori difficile de transposer dans le domaine spectral XUV le concept de couche antireflet tel que nous venons de le décrire car nous ne disposons pas de matériaux transparents. En effet, avec des matériaux non transparents, deux difficultés majeures apparaissent. Premièrement, les déphasages à la réflexion aux interfaces ne seront plus nuls[21] et viendront s'ajouter au déphasage du à la propagation dans la couche AR. Deuxièmement, la couche AR risque d'atténuer fortement la réflectivité du miroir multicouche sur lequel il sera déposé.

En réalité, nous allons voir dans les exemples qui suivent qu'en choisissant convenablement le matériau de la couche AR, ces deux difficultés peuvent être surmontées. Il faut pour cela que le cumul des déphasages introduits aux interfaces permettent de diminuer le déphasage nécessaire dû à la propagation (et par conséquent l'épaisseur de la couche AR).

Le cas particulier d'une couche mince transparente antireflet sous incidence normale sur un substrat transparent est résumé dans le tableau 12. La situation dans le cas général pour un dépôt d'une couche AR non transparente sous incidence normale sur un substrat non transparent est décrite dans le tableau 13. On note $\varphi_{j,i,}$le déphasage associé à la réflexion sur l'interface j/i : $\varphi_{j,i}$= Arg ($r_{j,i}$) (voir équation 3.2).

Tableau 12 : Variation d'amplitude et déphasage induits dans le cas d'un AR sur substrat avec matériaux transparents

	Variation d'amplitude	déphasage
Réflexion à l'interface vide -> AR	$r_{v,AR}$	π
Réflexion à l'interface AR -> substrat	$r_{AR,s}$	π
Propagation (aller-retour) dans AR	1	$4\pi\, n_{AR}\, e_{AR} / \lambda$
Conditions pour un antireflet à λ_0	$r_{v,AR}(\lambda_0) = r_{AR,s}(\lambda_0)$	$n_{AR}(\lambda_0)\, e_{AR} = \lambda_0/4$

Tableau 13 : Variation d'amplitude et déphasage induits dans le cas d'un AR sur substrat avec matériaux non transparents

	Variation d'amplitude	déphasage
Réflexion à l'interface vide -> AR	$\lvert r_{v,AR} \rvert$	$\varphi_{v,AR}$
Réflexion à l'interface AR -> substrat	$\lvert r_{AR,s} \rvert$	$\varphi_{AR,s}$
Propagation (aller-retour) dans AR	$\exp(-4\pi k_{AR}\, e_{AR} / \lambda)$	$4\pi\, n_{AR}\, e_{AR} / \lambda$
Conditions pour un antireflet à λ_0	$\lvert r_{v,AR} \rvert = \lvert r_{AR,s} \rvert \times \exp(-4\pi k_{AR}\, e_{AR} / \lambda_0)$	$4\pi\, n_{AR}\, e_{AR} / \lambda_0 = \pi + \varphi_{v,AR} - \varphi_{AR,s}$

[21] Dans le cas de l'AR précédent, il existe en réalité un déphasage de π pour les réflexions sur les interfaces 1 et 2. Cependant, ces déphasages se compensent et n'interviennent donc pas dans l'expression de $\Delta\varphi$.

On voit effectivement que les déphasages successifs à la réflexion et à la transmission aux interfaces peuvent influencer la condition sur l'épaisseur de la couche AR. Typiquement, si ($\varphi_{v,AR}$-$\varphi_{AR,s}$) vaut -π/2 la couche AR ne devra plus avoir qu'une épaisseur optique de λ/8.

4.4.2 Réjection de la bande VUV

Dans de nombreux cas, la source de rayonnement XUV qui illumine le miroir multicouche produit également un rayonnement VUV (50-200 nm) intense qu'il est indispensable de filtrer. En imagerie solaire XUV par exemple, les rayonnements VUV et également UV et visibles doivent être filtrés avec des taux de réjection supérieurs à 10^6 afin de ne pas polluer les images XUV. En lithographie EUV à 13.5 nm, les résines utilisées sont également sensibles au rayonnement VUV produit par la source.[Herpen] Les sources à génération d'harmoniques d'ordre élevé émettent, en plus des harmoniques XUV, des harmoniques basses dans le domaine VUV et généralement très intenses.

Les miroirs multicouches XUV ont généralement un pouvoir réflecteur non négligeable dans la bande VUV. Cela est essentiellement dû à la forte variation des indices optiques dans cette gamme spectrale pour la plupart des matériaux, qui induit une réflexion importante à la première interface (*i.e.* la surface) de l'empilement. A titre d'exemple, nous avons tracé sur la figure 39 les spectres de réflectivité mesurés pour 2 types d'empilement. Comme le montrent ces exemples, le pouvoir réflecteur dans le VUV est du même ordre de grandeur que celui de la raie XUV que l'on souhaite sélectionner. Il est donc indispensable de filtrer la composante VUV.

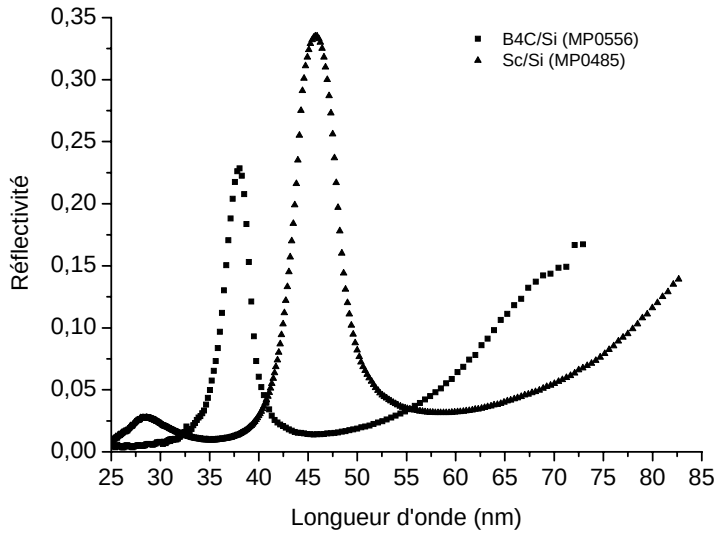


Figure 39: Réflectivité à grande longueur d'onde mesurée sur des multicouches B_4C/Si et Sc/Si.

La solution utilisée jusqu'à présent consiste à placer un filtre métallique en transmission entre la source et le miroir multicouche. Cependant cette solution présente plusieurs inconvénients majeurs : la transmission est faible (surtout si l'on s'éloigne du seuil d'absorption du métal choisi), les filtres sont fragiles mécaniquement et le nombre de matériaux disponibles sous cette forme est relativement restreint (ce qui limite les gammes spectrales d'utilisation).

L'objectif de cette étude est de concevoir un miroir réfléchissant efficacement une longueur d'onde XUV donnée (typiquement entre 30 et 50 nm) avec un taux de réjection élevé dans la bande VUV.

Il est intéressant de calculer la longueur d'absorption (= $\lambda/4\pi k$) dans la gamme VUV afin de connaître l'ordre de grandeur de la profondeur à laquelle l'onde va pénétrer dans l'empilement. Le tableau 14 donne les longueurs d'absorption de différents matériaux pour une longueur d'onde de 80 nm.

Tableau 14 : coefficient d'absorption et longueur d'absorption de différents matériaux pour une longueur d'onde de 80 nm

matériau	absorption	longueur d'absorption (nm)
Si	0,45	14,15
Mo	1,01	6,30
B_4C	1,166	5,46
SiC	1,1	5,79
SiO_2	0,7841	8,12

La longueur de pénétration du rayonnement VUV étant typiquement de 10nm d'après le tableau précédent, seules les couches à la surface de l'empilement vont influencer la réponse spectrale du miroir dans cette gamme. En choisissant bien la nature et l'épaisseur de cette couche, il doit être possible d'optimiser la réjection du VUV sans trop pénaliser la réflectivité dans l'XUV. Nous avons donc étudié l'influence de la couche de surface sur la réponse spectrale.

Sur la figure 40, nous avons tracé la réflectivité en incidence normale de différents matériaux massifs. La plupart des matériaux utilisés dans les empilements multicouches XUV présentent un pouvoir réflecteur supérieur à 10 % dans la gamme 60-100 nm.

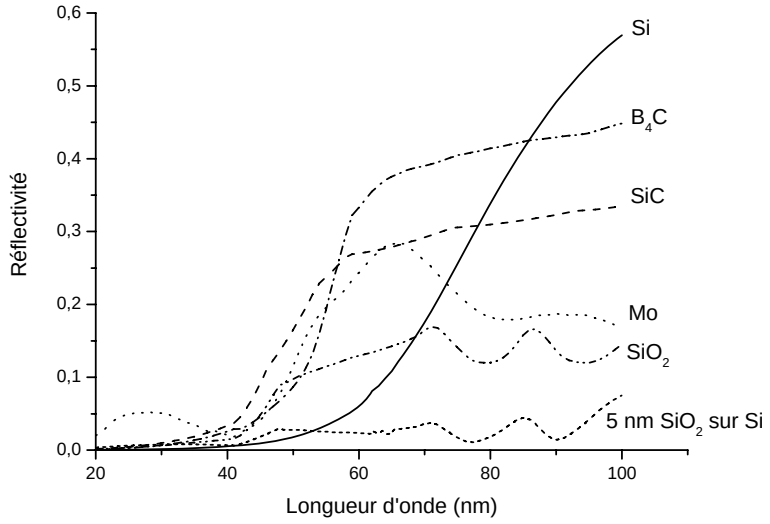


Figure 40 : Réflectivité calculée en incidence normale pour différents matériaux massifs dans la gamme VUV.

Par contre, il est possible en ajoutant une couche mince à la surface de l'un de ces matériaux de réduire considérablement la réflectivité dans la gamme VUV. Pour illustrer ceci, nous avons superposé sur la figure 40 le spectre de réflectivité calculé pour un substrat de Si recouvert d'une couche mince de SiO_2 de 5 nm d'épaisseur. Dans ce cas, la réflectivité reste inférieure à quelques pourcents sur toute la gamme 60 à 100 nm. On obtient un effet antireflet du fait des interférences entre les ondes réfléchies aux deux interfaces (vide/SiO_2 et SiO_2/Si).

Pour nous en persuader, nous avons calculé les différentes valeurs de variation d'amplitude et de déphasage dans cette structure. Nous présentons dans le tableau 15, les valeurs numériques de ces différentes valeurs (calculées à partir des équations 3.2 et 3.3) pour des longueurs d'onde de 60 nm et 80 nm. On remarque que la condition sur la phase reste relativement bien respectée (à 10%) entre 60nm et 80nm. Par contre, il existe un écart plus important sur la condition d'amplitude qui explique que la réflectivité reste de l'ordre de quelques pourcents pour ce revêtement.

Tableau 15 : Variation d'amplitude et déphasage induits dans le cas d'une couche de 5 nm de SiO2 déposée sur substrat de Si à 60 nm (à gauche) et 80 nm (à droite) de longueur d'onde.

	Variation d'amplitude		Déphasage (rad)	
	60 nm	80 nm	60 nm	80 nm
Réflexion à l'interface vide / AR	0.36	0.35	–1.61	–2.17
Réflexion à l'interface AR / substrat	0.39	0.48	+0.8	–0.32
Propagation (aller-retour) dans AR	0.5	0.54	+0.83	+0.94
Ecart à la condition pour un antireflet à λ_0	46%	26%	+0.1	-0.35

Les questions qui se posent ensuite sont les suivantes : ce type de couche antireflet est-il encore efficace en surface d'empilement multicouche ? Si oui, le pouvoir réflecteur du miroir XUV n'est-il pas trop atténué ? En réalité, le concept de la couche AR sur un substrat peut facilement être transposé au cas d'un antireflet sur une multicouche. On peut en effet utiliser l'indice complexe moyen de la multicouche pour calculer le coefficient de réflexion à l'interface AR/MC en utilisant l'équation 3.2 et estimer les conditions pour avoir un AR comme précédemment. En pratique, nous avons optimisé par simulation des couches AR de SiO2 sur des multicouches B_4C/Si et Sc/Si réfléchissant respectivement vers 32 nm et 42 nm. En général, il est nécessaire d'optimiser également l'épaisseur de la dernière couche de l'empilement (celle juste en dessous de l'AR) afin de limiter l'atténuation du pic Bragg par la couche AR.

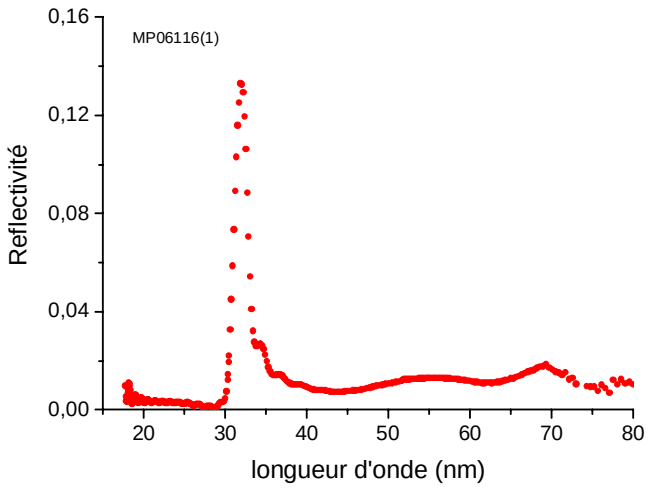


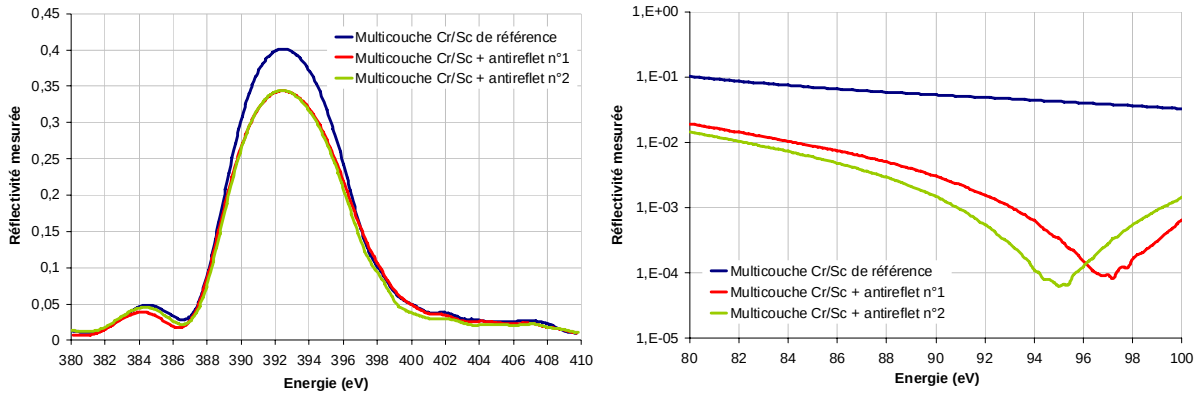
Figure 41 :Réflectivité mesurée sur rayonnement synchrotron (ligne BEAR, Elettra) sur un miroir multicouche B_4C/Si optimisé pour une longueur d'onde de 32 nm et traité AR.(4,4 nm de SiO_2 ont été déposés en surface de l'empilement pour réaliser l'AR).

La figure 41 présente un exemple de résultat obtenu expérimentalement avec une multicouche B_4C/Si traité AR. La réflectivité reste inférieure à 2% sur la gamme spectrale 40 - 80 nm alors que nous avions 15% de réflectivité à 70 nm pour une multicouche B_4C/Si sans le traitement AR (voir figure 39).

Ce nouveau type de revêtement XUV présente un intérêt particulier pour la sélection d'harmoniques sur les sources HHG. Des miroirs plans et sphériques optimisés avec ce procédé AR pour sélectionner différentes harmoniques (H17 à H25) ont été utilisés pour des expériences de photoionisation simple et double à deux couleurs dans des gaz rares réalisées sur source HHG par A. Huetz et col.[Guyetand]

4.4.3 Réjection d'une raie dans la bande XUV

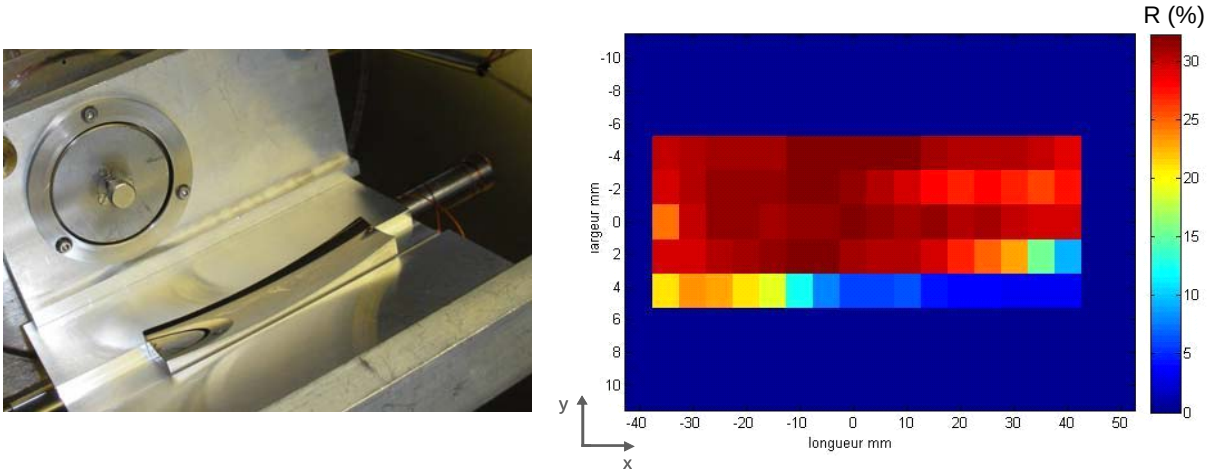
Une démarche similaire a été utilisée dans le cadre de la thèse d'Aurélie Hardouin en collaboration avec la société XENOCS pour concevoir un traitement anti-reflet autour de la raie d'émission Lα du Si (λ≈13,5 nm, E≈92 eV) sur un revêtement multicouche Cr/Sc optimisé pour réfléchir la raie Kα de l'azote (λ=3,16 nm, E=392 eV).[Hardouin] Les mesures effectuées sur des multicouches Cr/Sc sans AR et avec deux épaisseurs d'AR différentes sont tracées en figure 42. La couche AR est constituée d'une simple couche de SiO_2 déposée par pulvérisation cathodique réactive. Son épaisseur est de 11,8 nm pour l'antireflet n°1 et de 12,1 nm pour l'antireflet n°2. La figure 42b démontre clairement l'efficacité du traitement AR autour de la raie d'émission Lα du Si. Une diminution de la réflectivité mesurée d'un facteur supérieur à 100 est obtenue sur une large gamme d'énergie. De plus, la position du minimum de réflectivité peut être ajustée avec l'épaisseur de la couche. Comme on peut le voir sur la figure 42a, ces traitements AR affectent peu la réflectivité de la multicouche à 392 eV.



(a) (b)

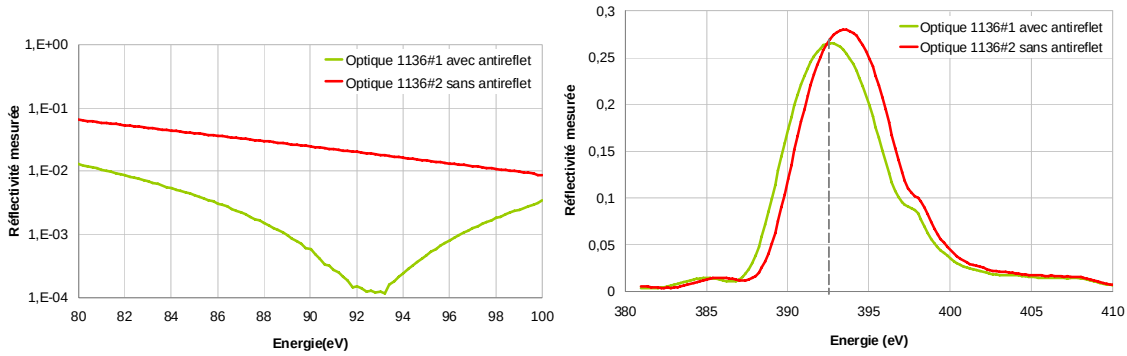
Figure 42 : Mesures de réflectivité effectuées sur la ligne BEAR à Elettra (Trieste, Italie) sur une multicouche Cr/Sc sans AR et avec deux épaisseurs d'AR, (a) à l'énergie d'utilisation, et(b) autour de la raie Lα du silicium.

Ces traitements Cr/Sc et AR ont fait l'objet d'un transfert chez XENOCS et ont été appliqués sur des optiques elliptiques destinées à servir d'analyseur pour les expériences de microsonde électronique. Un gradient latéral sur la multicouche Cr/Sc a du être optimisé afin de prendre en compte les variations d'angles d'incidence sur l'optique. Nous avons ensuite mesuré ces optiques elliptiques sur la ligne de métrologie de l'ALS[22] à Berkeley. La figure 43 présente le résultat de la cartographie de réflectivité de l'optique à 392 eV pour une optique. L'épaisseur de l'antireflet en SiO_2 a été optimisée à partir de l'étude précédente afin de positionner le minimum à 92 eV. Les spectres mesurés au centre d'une optique elliptique traitée AR sont comparés à ceux obtenus sans traitement AR sur la figure 44. Ces résultats confirment l'efficacité de ce traitement antireflet pour l'application souhaitée.



(a) (b)

Figure 43 : (a) Optique elliptique en cours de mesure sur la ligne de métrologie EUV de l'ALS (ALS 6.3.2) et (b) cartographie de la réflectivité R à 392 eV mesurée en chaque point de l'optique à l'angle d'incidence prévu.



(a) (b)

Figure 44: Mesures de réflectivité effectuées au centre des optiques 1136#1 (avec antireflet) et 1136#2 (sans antireflet). (a) Mesures à l'énergie d'utilisation. (b) Mesures autour de la raie d'émission Lα du Si.

[22] Advanced Light Source : source de rayonnement synchrotron de l'université de Berkeley.

4.4.4 Miroirs bi bande à sélectivité paramétrable

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que l'optimisation de la ou des couche(s) supérieure(s) de l'empilement permettait d'obtenir, par un effet d'interférence, une réjection importante à une longueur d'onde spécifique. Nous pouvons imaginer une généralisation de ce phénomène en considérant un empilement constitué de deux structures périodiques superposées. Le fait d'utiliser une multicouche en surface plutôt qu'une simple couche AR va permettre de conserver un pouvoir réflecteur élevé au pic de Bragg même pour des épaisseurs totales relativement importantes. On a ainsi la possibilité de générer plusieurs extinctions de réflectivité dans une gamme spectrale voisine des pics de Bragg.

Une telle structure bi périodique permet de plus d'ajuster la position des pics de Bragg de la structure périodique inférieure. La position des pics reste cependant toujours comprise dans la bande passante de la structure inférieure. On aura donc intérêt à choisir une multicouche avec un fort pouvoir réflecteur et une large bande passante afin de maximiser l'accordabilité du miroir. Les empilements de type tri matériaux (voir le paragraphe 4.3.3) qui permettent d'optimiser simultanément la bande passante et la réflectivité sont donc particulièrement bien adaptés.

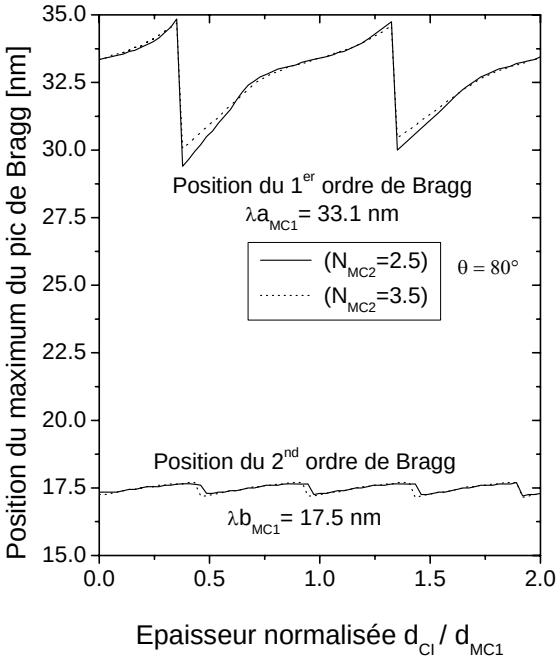


Figure 45: Evolution de la position des pics Bragg d'ordre 1 et 2 en fonction de l'épaisseur de la couche intermédiaire.[Hecquet09a]

L'étude et l'optimisation de tels miroirs bi bande à sélectivité paramétrable ont fait l'objet d'une partie importante du travail de thèse de Christophe Hecquet. Afin d'ajouter un degré de liberté dans l'optimisation et ainsi de pouvoir découpler l'optimisation de la position des pics de Bragg de celle des extinctions, nous avons ajouté une couche intermédiaire entre les deux structures périodiques. L'épaisseur de celle-ci permet alors d'ajuster la position des pics de Bragg, comme illustré sur la figure 45.

Ce type de structure et la méthode d'optimisation « manuelle » développée par Christophe Hecquet ont permis de concevoir plusieurs miroirs bi bande avec des réjections spécifiques pour des applications à l'observation de la couronne solaire.[Hecquet09b] La figure 46 présente un exemple de spectre mesuré sur rayonnement synchrotron. Nous pouvons constater que la position des pics de Bragg et des extinctions sont en bon accord avec la simulation. Par ailleurs, la réflectivité mesurée reste comparable à celle obtenue avec des miroirs multicouches ordinaires (*i.e.* un simple empilement périodique).

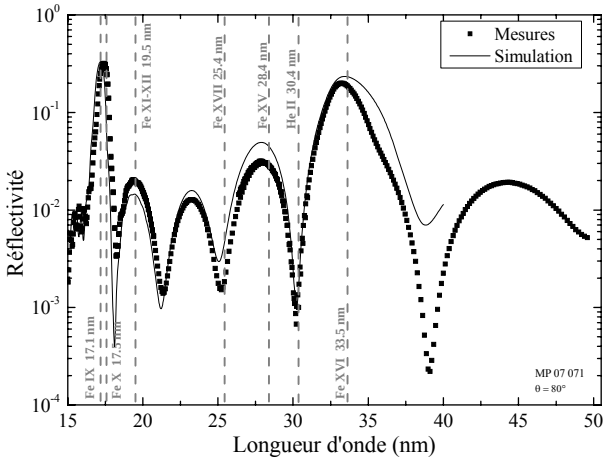


Figure 46: Réflectivités mesurée (carrés) et simulée (trait) pour un miroir bi bande optimisés pour réfléchir les raies à 17,5 nm et 33,5 nm et rejeter la raie à 30,4 nm.

Ce nouveau type de miroir apporte des avantages intéressants pour l'imagerie solaire dans l'EUV. En effet il permet, pour une même pupille d'entrée du télescope, d'observer deux raies solaires par simple choix du filtre métallique utilisé. Cela diminue la charge thermique et engendre un gain substantiel de poids et d'encombrement. Ces revêtements bi bande ont été proposés au sein du consortium EUVI qui a été retenu pour réaliser les télescopes EUV de la mission ESA « Solar Orbiter » (lancement prévu en 2017-2018).

4.5 Miroirs EUV large bande

La réalisation de miroirs large bande dans le domaine EUV est motivée par plusieurs applications telles que le transport d'impulsions ultra brèves (optique attoseconde),[Beigman] la physique solaire avec la spectroscopie EUV à l'aide de réseaux revêtus multicouche[Seely] ou encore l'amélioration du rendement des sources XUV.[Wang00]

Il existe deux manières d'élargir le pic de Bragg d'une structure périodique : superposer plusieurs structures périodiques (avec des périodes différentes) ou réaliser une structure apériodique (pour laquelle toutes les couches ont des épaisseurs différentes). Nous avons choisi, dans un premier temps de nous intéresser à la première solution qui présente un avantage majeur : la possibilité de contrôler précisément les paramètres des structures périodiques indépendamment les unes des autres avant de les superposer. Nous présenterons ensuite les résultats obtenus avec des structures apériodiques. Pour finir, nous nous intéresserons à une application majeure de ce type de miroirs : le transport et la compression d'impulsions attosecondes.

4.5.1 Miroirs à structure bi périodique

La structure que nous avons étudiée est représentée sur la figure 47. Elle est constituée de deux multicouches périodiques MC1 et MC2. Le nombre de périodes de MC1 (respectivement MC2) est noté N1 (N2) et la valeur de la période d1 (d2). Du fait de l'absorption, il est préférable de déposer la multicouche de plus faible période au dessus. On aura donc d1>d2. Les deux multicouches MC1 et MC2 sont constituées d'un empilement tri matériau B_4C/Mo/Si. L'utilisation de structures B_4C/Mo/Si pour réaliser un miroir large bande présente plusieurs avantages. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 4.3.2, cette structure tri matériau permet à la fois d'optimiser la réflectivité et d'élargir la bande passante, par rapport à une structure à deux matériaux. De plus, la réflectivité croît plus rapidement avec le nombre de périodes. On peut donc atteindre une réflectivité élevée avec un nombre de périodes réduit. Les simulations montrent que l'on peut atteindre 23% de réflectivité à 32 nm avec seulement 2 périodes, à comparer à 9% pour une structure B_4C/Si.

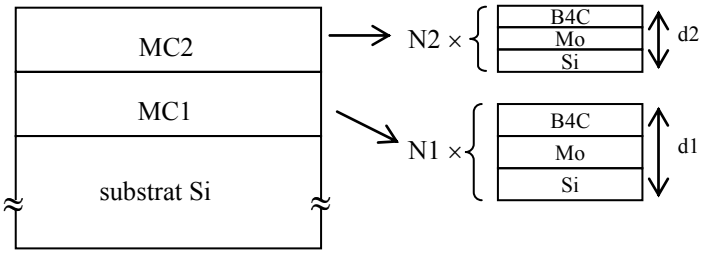


Figure 47 : schéma de la structure bi périodique tri matériau

Une première approche pour valider expérimentalement l'intérêt de ces structures consiste à superposer deux multicouches optimisées indépendamment à 2 longueurs d'onde différentes. Nous avons choisi de centrer MC1 à 40 nm et MC2 à 32 nm. Les épaisseurs optimales des trois matériaux (B_4C, Mo et Si) sont alors calculées indépendamment pour les deux multicouches à l'aide d'un code Matlab. Les nombres de périodes N1 et N2 ont été optimisés par simulation de la structure complète. Pour MC1, on constate qu'il n'y a plus d'évolution du spectre de réflectivité au-delà de quatre périodes. Nous avons donc choisi N1 égal à 4. Le choix de N2 résulte quant à lui d'un compromis entre la transmission et la réflectivité de MC2. En effet, si N2 est trop élevé, tous les photons XUV seront absorbés par MC2 et aucun ne sera réfléchi par MC1. A l'inverse si N2 est trop faible la réflectivité de MC2 sera négligeable par rapport à celle de MC1. Les simulations ont montré que la valeur optimale pour N2 est 2. Les multicouches MC1 et MC2 ont été calibrées et déposées indépendamment puis le miroir large bande a été réalisé en déposant successivement MC1 et MC2 sur le même substrat.

Le spectre de réflectivité de ce miroir, nommé LB1, a été mesuré sur rayonnement synchrotron (ligne BEAR sur Elettra) sur une large gamme de longueur d'onde (de 12 nm à 45 nm) pour une incidence de 10 degrés. Le résultat est représenté sur la figure 48. Le spectre théorique (simulé avec les épaisseurs optimales) est également tracé pour comparaison. On constate un relativement bon accord entre la théorie et l'expérience. On obtient expérimentalement une bande passante de 9 nm avec une réflectivité maximale supérieure à 0,22. Le résultat de cette première étude confirme donc l'intérêt de ce type de structure bi périodique à trois matériaux pour réaliser des miroirs à large bande spectrale. De plus, ce type de miroir possède également une large bande passante angulaire (figure 49), ce qui peut être intéressant pour certaines applications, notamment pour des imageurs grand champ où l'incidence peut varier significativement.

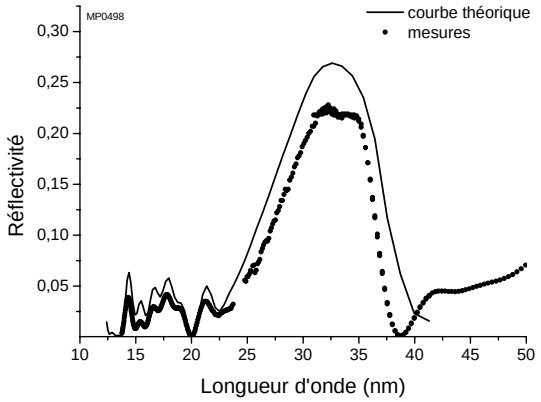


Figure 48: Réflectivité expérimentale (points) et théorique (ligne) du miroir large bande LB1 en fonction de la longueur d'onde (angle d'incidence = 10 degrés)

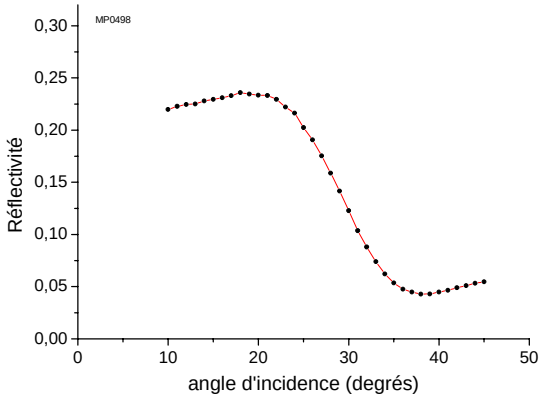


Figure 49: Réflectivité expérimentale du miroir large bande LB1 en fonction de l'angle d'incidence (longueur d'onde = 33 nm)

Dans cette première approche du problème, nous avons négligé les interférences qui existent entre MC1 et MC2. Pour les prendre en compte, il faut nécessairement optimiser l'empilement bi périodique complet. Nous avons donc développé un programme Matlab qui permet l'optimisation simultanée des épaisseurs des matériaux des 2 multicouches à l'aide d'une fonction de mérite.[Gautier05c] Le résultat obtenu est présenté sur la figure 50 (miroir LB2) où l'on compare le spectre expérimental, le spectre théorique visé et le spectre simulé en tenant compte des erreurs expérimentales d'épaisseur.

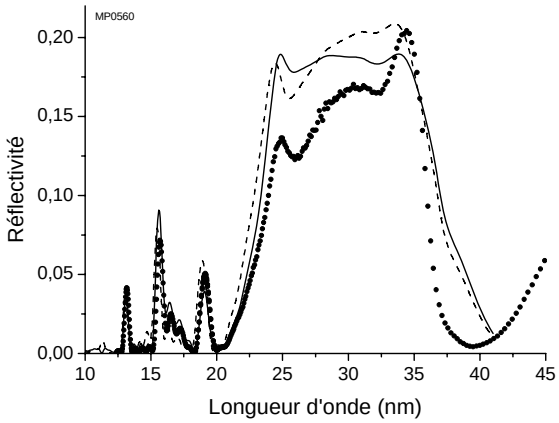
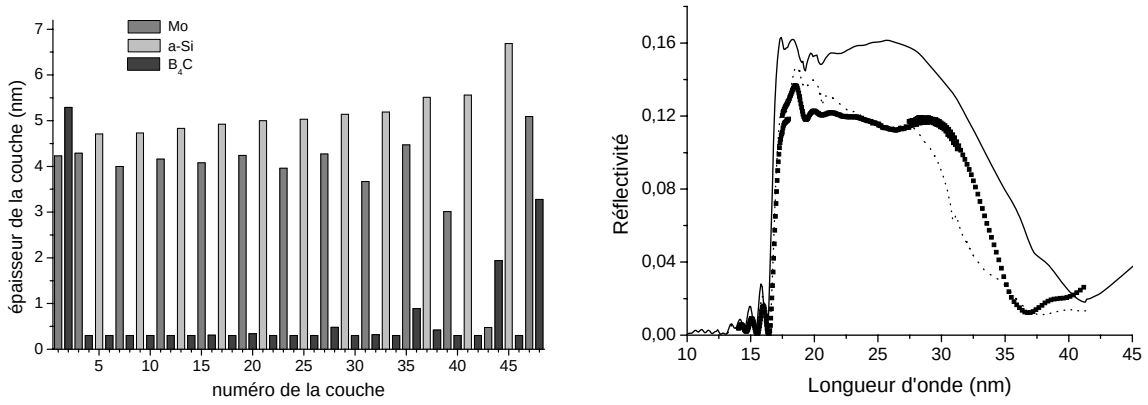


Figure 50 : Réflectivité expérimentale (points) et théorique (trait plein) du miroir large bande LB2 en fonction de la longueur d'onde (angle d'incidence = 10 degrés). La ligne en tirets correspond à la simulation prenant en compte les imperfections de l'empilement (erreurs d'épaisseur).

4.5.2 Miroirs à structure apériodique

On peut espérer optimiser encore les résultats précédents (en termes de réflectivité et/ou de bande passante) en augmentant le nombre de multicouches périodiques superposées. La généralisation de ce concept conduit en fait à un empilement apériodique dans lequel l'épaisseur de chaque couche est optimisée. Suivant cette idée, nous avons optimisé plusieurs empilements apériodiques constitués de B_4C, Mo et Si à l'aide de la méthode de Needle[Tikhonravov] implémentée dans le logiciel TFCalc. Cette méthode permet d'optimiser l'épaisseur des couches mais également leur nombre et leur ordre dans l'empilement. Il n'est ainsi plus nécessaire de spécifier la structure à utiliser. Un des résultats obtenus est présenté en figure 51.[Menesguen]



(a) *(b)*

Figure 51 : (a) épaisseurs visées (la couche numéro 1 est sur le substrat) et (b) spectre expérimental (points) et théorique (trait plein) pour un angle d'incidence de 10 degrés. La ligne en pointillés correspond à la simulation prenant en compte les imperfections de l'empilement (erreurs d'épaisseur) et de nouvelles constantes optiques pour B_4C et Mo d'après [Souffli08] et [Tarrio] respectivement.

Tableau 16: comparaison des performances expérimentales obtenues avec les différentes méthodes d'optimisation de l'empilement

structure	Nom	optimisation	R max.	R moy.	$\Delta\lambda/\lambda_0$	BP@50%
Bi périodique	LB1	Matlab : MC1 et MC2 indépendamment	0,222	0,184	0,29	27,3 – 36,5 = 9,2 nm
Bi périodique	LB2	Matlab : structure complète	0,204	0,153	0,4	23,9 - 36 = 12,1 nm
Apériodique	MATTO7	TFCalc	0,137	0,116	0,6	17 – 33,2 = 15,2 nm

Dans le tableau 16, nous comparons les résultats expérimentaux obtenus avec les différentes méthodes d'optimisation de l'empilement. On remarque que l'utilisation de programmes d'optimisation sur la structure complète permet d'élargir notablement la bande passante mais au détriment de la réflectivité moyenne.

4.5.3 Transport et compression d'impulsions attosecondes

La recherche d'impulsions lumineuses toujours plus brèves est motivée par la volonté d'étudier des phénomènes de plus en plus rapides, comme par exemple des phénomènes atomiques ou moléculaires ultrarapides. En effet, dans ces expériences, la résolution temporelle est limitée par la durée de l'impulsion. La possibilité de générer des impulsions attosecondes en utilisant une source à génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG : High Harmonic Generation) a été démontrée expérimentalement en 2001 par Paul et al.[Paul] Depuis, des trains d'impulsions et des impulsions uniques ont été obtenus dans plusieurs laboratoires. Les harmoniques d'ordre élevé sont généralement générées par focalisation d'un faisceau laser IR intense dans un gaz rare. L'interaction non linéaire qui résulte des fortes intensités mises en jeu (10^{13} à 10^{15} W/cm² dans le gaz) créée des harmoniques jusque dans le domaine XUV. Un des problèmes majeurs soulevé par ces nouvelles impulsions ultra brèves concerne leur manipulation : comment réfléchir ou focaliser des impulsions si brèves sans altérer leur propriété temporelle ? Les miroirs multicouches peuvent apporter une solution efficace s'ils satisfont les deux conditions suivantes. Premièrement, ils doivent posséder une large bande passante et une réflectivité élevée afin de réfléchir efficacement tout le spectre de l'impulsion initiale. Deuxièmement, leur phase spectrale doit être optimisée sur toute la bande passante afin de ne pas créer de délai entre les différentes composantes spectrales (ce qui conduirait à élargir temporellement l'impulsion).

En réalité, la relation de phase qui existe entre les différentes harmoniques n'est pas linéaire : il existe dans le processus de génération une dispersion de la vitesse de groupe (nommé en anglais GDD : group delay dispersion) qui élargit temporellement l'impulsion.[Mairesse]

On peut alors envisager l'utilisation d'un miroir multicouche pour comprimer les impulsions créées par les sources HHG. Il suffit pour cela que la phase spectrale du miroir présente un GDD opposé à celle de l'impulsion initiale.

Le contrôle de la phase spectrale du miroir s'avère donc primordiale pour ce domaine d'application des miroirs multicouches. Si les différentes composantes spectrales ne parcourent pas le même chemin optique dans la multicouche, un délai va apparaître entre elles après réflexion. Pour illustrer cela, on peut estimer le temps mis par la lumière pour être réfléchi par le miroir (*i.e.* le temps passé à l'intérieur de la multicouche) : ce temps est de l'ordre d'une femtoseconde pour une épaisseur totale traversée de 300 nm. Les temps mis en jeu dans le phénomène de réflexion sont donc comparables, voire supérieurs à la durée de l'impulsion initiale.

On s'est intéressé dans cette étude à deux types de miroirs :

- des miroirs à phase spectrale linéaire[23] permettant de transporter des impulsions attosecondes sans les élargir temporellement;
- des miroirs à phase spectrale parabolique ayant un coefficient quadratique optimisé afin de compresser les impulsions attosecondes générées par source HHG.

Dans un premier temps, nous avons cherché à mesurer la réponse en phase des miroirs large bande présentés précédemment (paragraphe 4.6.1). Pour cela, des mesures sur une source attoseconde ont été réalisées au Centre Laser de Lund (LLC) en collaboration avec le Laboratoire d'Optique Appliqué (LOA) de Palaiseau. Des mesures de la phase spectrale de l'impulsion avant et après réflexion sur le miroir multicouche ont permis pour la première fois d'accéder à la phase spectrale expérimentale d'un miroir multicouche. Cette mesure est effectuée par une méthode basée sur la photoionisation à deux photons, deux couleurs, nommée RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions).[Paul] La figure 52 montre le schéma de l'expérience et la comparaison des phases mesurées avec le miroir multicouche et avec un miroir de référence (miroir toroïdal en incidence rasante). Ces mesures ont permis de démontrer expérimentalement que ce type de miroir multicouche présente une phase linéaire dans la bande passante et ne rallonge donc pas la durée de l'impulsion initiale.[Morlens06]

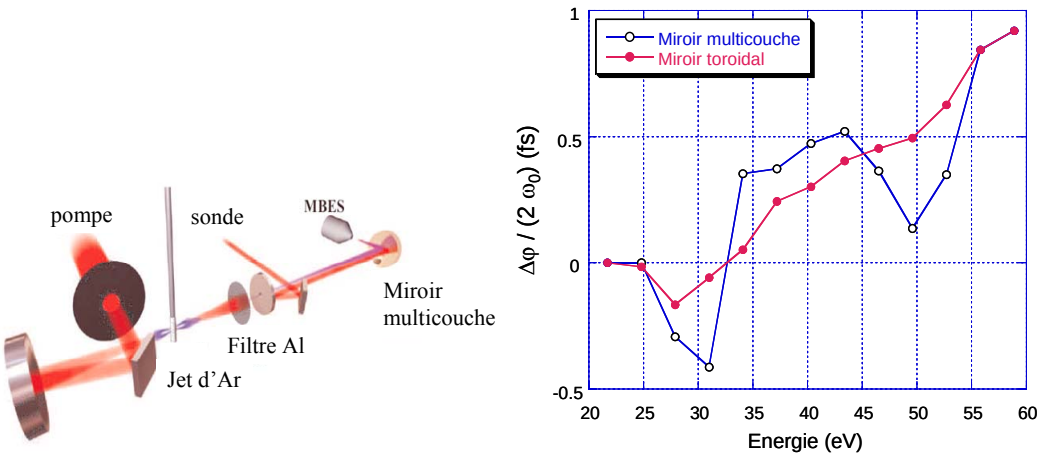


Figure 52 : (a) schéma de l'expérience de mesure de phase par la méthode RABBITT et (b) résultats obtenus avec le miroir multicouche et avec un miroir toroïdal utilisé comme référence.

[23] Notons qu'il est indispensable de présenter les résultats en fonction de l'énergie et non de la longueur d'onde afin de voir le caractère linéaire de la phase. De plus, dans cette représentation, les différentes harmoniques ont un espacement régulier (environ 3,1 eV) et donc la largeur de bande passante renseigne directement sur le nombre d'harmoniques réfléchies par le miroir.

Suite à ce premier résultat très prometteur, nous avons conçu et réalisé une série de « miroirs attosecondes » en tenant compte de la phase spectrale lors de l'optimisation. Les figures 53 et 54 présentent deux exemples de réponses optimisées en phase et en réflectivité sur le domaine 35 – 55 eV : sur la figure 53 un miroir à phase linéaire fonctionnant sous incidence de 45° et sur la figure 54 un miroir à phase parabolique fonctionnant sous incidence de 10°.

La caractérisation de la phase spectrale de ces miroirs est actuellement en cours par plusieurs méthodes : mesures sur une source attoseconde au CEA de Saclay (par la méthode RABBITT) d'une part, et calcul de la phase par mesure du rendement de photoélectrons de la structure sur rayonnement synchrotron (ligne BEAR sur Elettra) d'autre part.

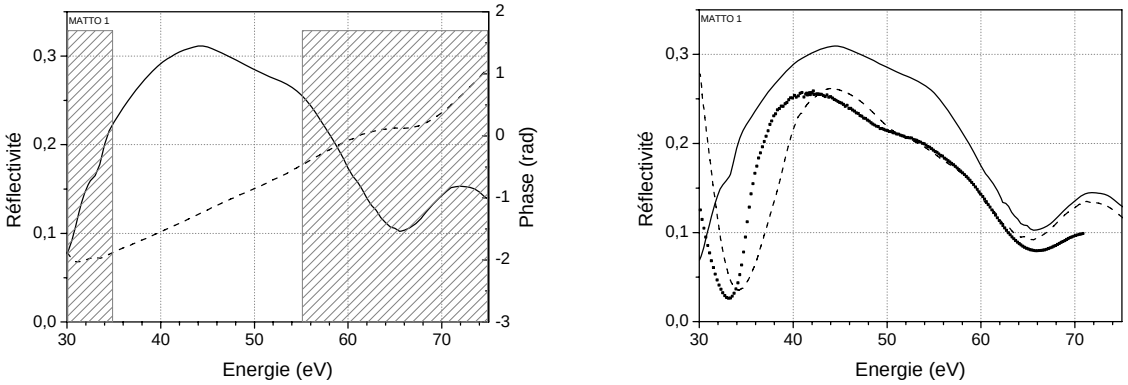


Figure 53 : (a) Réflectivité et phase optimisés pour 45° d'incidence sur la gamme 35-50 eV.
(b) trait plein : résultat de l'optimisation, carrés : données expérimentales, tirets : simulation avec les constantes optiques de B_4C et de Mo d'après [Souffli08] et [Tarrio] respectivement.

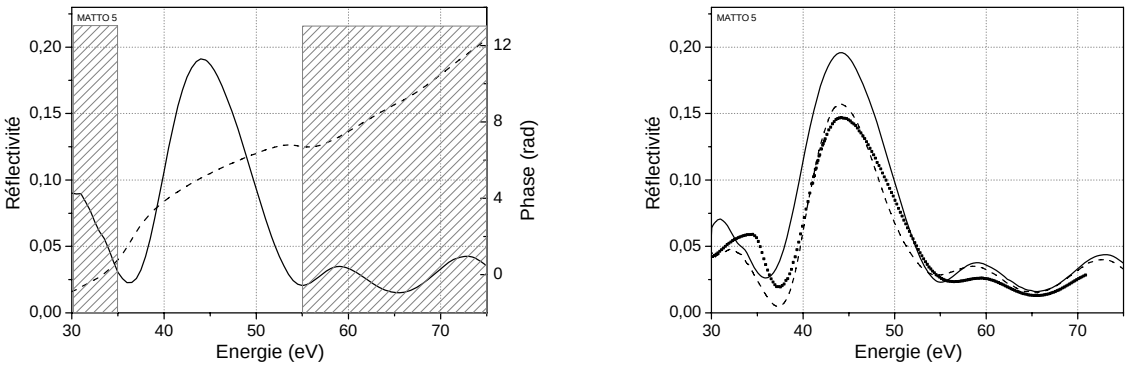


Figure 54 : (a) Réflectivité et phase optimisés pour 10° d'incidence sur la gamme 35-50 eV.
(b) trait plein : résultat de l'optimisation, carrés : données expérimentales, tirets : simulation avec les constantes optiques de B_4C et de Mo d'après [Souffli08] et [Tarrio] respectivement.

5 Conclusion et perspectives

Les études menées depuis dix ans au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique nous ont permis d'une part de progresser dans la compréhension de la physique des empilements multicouches XUV et d'autre part de développer de nouveaux composants pour cette gamme spectrale.

De nombreux matériaux ont été étudiés et optimisés par pulvérisation cathodique magnétron et/ou par pulvérisation par faisceau d'ions : Mo, Si, B_4C, SiC, SiN, SiO_2, Sc, ScN, Cr, CrN, W, Al, AlSi. La maîtrise de ces matériaux et des interfaces formées lorsqu'ils sont empilés a permis des progrès importants dans le domaine de l'optique multicouche XUV.

La conception de lames séparatrices XUV a permis la réalisation d'expériences d'interférométrie de Michelson XUV et ouvre la voie à de nouveaux développements d'optique XUV en transmission basés sur l'utilisation des microtechnologies.

L'amélioration de la réflectivité des miroirs multicouches dans le domaine XUV constitue une motivation importante pour nos recherches. La figure 55 est une "photo instantanée" des performances atteintes avec des miroirs multicouches en incidence quasi normale dans notre laboratoire (toutes les mesures ont été effectuées à 10° d'incidence excepté le Cr/Sc à 15°). Plusieurs systèmes multicouches ont été étudiées ces dernières années pour parvenir à ce résultat : des multicouches Mo/Si pour la lithographie EUV, des multicouches Cr/Sc pour la fenêtre de l'eau, des multicouches tri matériau B_4C/Mo/Si et des multicouches Sc/Si pour les plus grandes longueur d'onde.

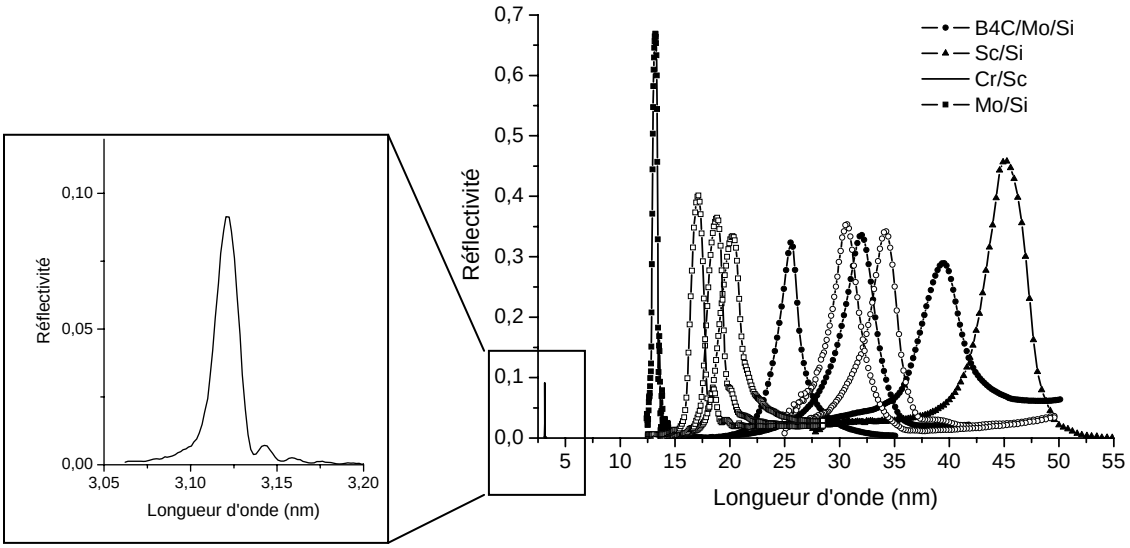


Figure 55: Bilan des miroirs multicouches XUV réalisés au LCFIO : réflectivités en incidence quasi normale mesurées sur les différents empilements étudiés depuis environ 10 ans.

La figure 55 montre que nos efforts se sont surtout portés sur la gamme 12,4 nm – 50 nm, gamme dans laquelle les applications se sont fortement développées. Il est intéressant de noter que les miroirs multicouches XUV permettent aujourd'hui d'atteindre des réflectivités supérieures à 30% sur l'ensemble de cette gamme spectrale. D'autres laboratoires ont développé des empilements à base de Mg avec des réflectivités supérieures à 40% autour de 30 nm. Tous ces résultats sont révélateurs des progrès effectués dans ce domaine au cours de ces dix dernières années. Comparativement, la gamme spectrale comprise entre 4 nm et 12,4 nm n'a pas connu un développement aussi rapide. Relativement peu d'études sur les multicouches ont été menées récemment dans ce domaine à l'exception de quelques longueurs d'onde particulières correspondant à des raies caractéristiques (notamment les raies Kα du bore et du carbone). Cependant, des applications vont certainement se développer dans ce domaine dans les années à venir, en attendant d'atteindre la fenêtre de l'eau, car les sources de type laser X, HHG et laser à électrons libres progressent vers l'émission d'un rayonnement toujours plus énergétique. L'expérience acquise et les méthodes développées dans le domaine EUV nous seront très utiles pour développer de nouveaux composants multicouches pour ces longueurs d'onde plus courtes. En théorie, il est possible d'obtenir des réflectivités supérieures à 35% autour de 5 nm de longueur d'onde avec une structure idéale (sans rugosité d'interface). En pratique, la rugosité d'interface devient le principal facteur limitant dans ce domaine spectral. La figure 56 montre qu'une rugosité d'interface de 0,5 nm suffit à faire descendre la réflectivité en dessous de 10%.

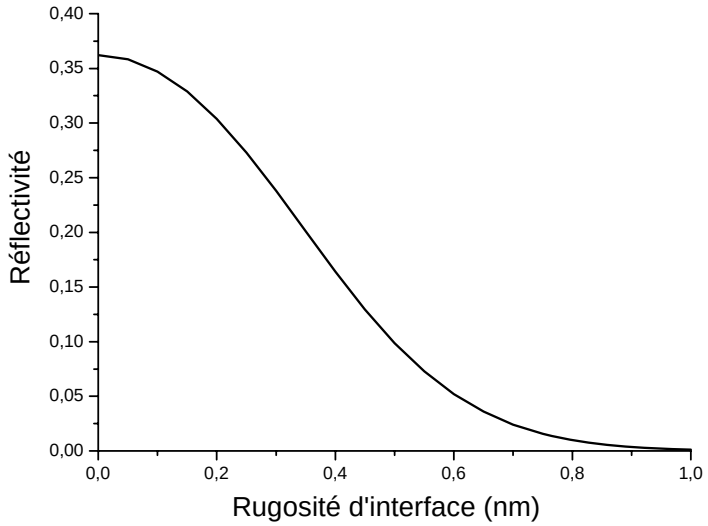


Figure 56: Réflectivité à 5,2 nm en incidence normale d'une multicouche Cr/a-C en fonction de la rugosité d'interface (multicouche comprenant 200 périodes de 2,6 nm d'épaisseur chacune).

Les quelques résultats expérimentaux publiés autour de 5 nm font effectivement état de réflectivités relativement faibles : des multicouches W/C, Cr/C et Co/C ont été étudiées mais les réflectivités mesurées en incidence quasi normale restent inférieures à 10%.[Mertins, Takenaka01] Afin d'améliorer ces performances, nous proposons de développer des empilements à trois matériaux. En effet, nos précédentes études ont montré que l'ajout d'un troisième matériau dans l'empilement permet de réduire la rugosité interfaciale.[Meltchakov] De plus, le nombre de périodes requises étant plus faible pour les multicouches à trois matériaux, l'effet d'accumulation de rugosité au cours du dépôt est minimisé.

L'optimisation de la structure des empilements, par ajout d'une couche en surface ou par superposition de multicouches, nous a permis d'accéder à de nouvelles fonctions optiques dans le domaine XUV : des traitements antireflets utiles dans de nombreuses applications (lithographie EUV, source HHG, analyse X…), des miroirs bi bande à sélectivité paramétrable pour l'imagerie solaire dans l'EUV. Enfin, le développement de miroirs XUV à large bande passante et le contrôle de la phase spectrale de ces miroirs ouvrent la voie à de nouvelles expériences, en particulier dans le domaine des impulsions attosecondes.

Actuellement, deux tendances se dégagent dans nos thèmes de recherches: la réalisation de fonctions spectrales de plus en plus complexes et la nécessité d'optimiser le système optique complet plutôt que l'empilement multicouche seul. Par exemple, pour les miroirs bi bande, il est indispensable de prendre en compte le spectre solaire d'une part et la réponse des filtres métalliques d'autre part. De même, pour les expériences sur sources HHG, l'étude et la modélisation de l'ensemble source, filtre et optique multicouche est nécessaire. Comme nous l'avons illustré au paragraphe 4.6, la conception de fonctions optiques de plus en plus complexes repose sur l'utilisation de logiciels informatiques utilisant des méthodes d'optimisation performantes telle que la méthode "Needle" par exemple. La réalisation de tels composants est rendue possible par l'amélioration des techniques de dépôt d'une part, et de la connaissance des matériaux en couches minces et de leurs interfaces d'autre part. L'étude des matériaux et des interfaces à l'échelle nanométrique est indispensable et sera poursuivie, notamment avec l'introduction de nouveaux matériaux dans les structures : l'aluminium, le magnésium, … Nous avons très récemment démontré que l'introduction d'aluminium dans les structures multicouches permet d'accéder à des réflectivités plus élevées que celles présentée en figure 55 dans la gamme 17 – 30 nm.[Meltchakov]

La maîtrise des contraintes mécaniques est également indispensable dans de nombreuses applications car celles-ci peuvent induire des déformations non négligeables de la

surface optique et même des ruptures mécaniques (notamment dans le cas des optiques en transmission). Récemment, nous avons installé un déflectomètre laser in situ afin de pouvoir étudier l'évolution des contraintes au cours de la croissance de la multicouche et l'influence des interfaces sur ces contraintes. Cet outil permettra également à terme un contrôle in situ des contraintes mécaniques dans les empilements réalisés.

Le développement d'optiques XUV en transmission, tel que des filtres multicouches ou encore des lames séparatrices à large bande passante apparaît aujourd'hui comme une nécessité pour de nombreuses applications : imagerie solaire, sources HHG, laser à électrons libres… Le savoir-faire que nous avons développé dans l'optimisation de spectres de réflectivité des miroirs multicouche sera mis à profit pour concevoir des optiques en transmission basées sur des empilements multicouches. En pratique, les optiques en transmission peuvent être obtenues par dépôt sur des membranes minces (telles que les membranes de Si_3N_4 utilisée dans la partie 4.1) ou par dépôt sur une couche sacrificielle que l'on dissout après le dépôt. Dans les deux cas, le contrôle des contraintes dans les couches minces déposées est primordial. Des études sont en cours en collaboration avec l'Institut d'Astrophysique Spatial dans le but de concevoir des filtres métalliques pour le spatial possédant d'une part des réponses optiques paramétrables et d'autre part des propriétés mécaniques renforcées par rapport aux filtres utilisés actuellement. Nous pensons que l''utilisation d'empilements multicouches satisfait ces deux objectifs. En effet, la combinaison de deux matériaux dans le filtre permet d'optimiser la réponse spectrale (en termes de bande passante et de bande à rejeter) ce qui s'avère indispensable lorsque l'on veut combiner ces filtres avec des miroirs bi-bandes (voir partie 4.4.4) pour isoler une bande d'émission du soleil. De plus, il a été montré que les empilements de couches métalliques présentent une résistance mécanique accrue lorsque l'épaisseur de la période atteint quelques nanomètres. [Embury, Srolovitz] La structure de l'empilement (nombre de périodes, épaisseur respectives des couches…) a une influence notable sur les propriétés optiques et mécaniques recherchées. Une étude expérimentale systématique sera donc nécessaire pour tous les couples de matériaux envisagés.

La structuration des multicouches par les moyens actuels de micro et nanotechnologies devrait permettre d'accélérer encore le développement de nouvelles fonctions optiques dans le domaine XUV. L'étude théorique et expérimentale de la structuration 3D des empilements multicouches constituera donc un de nos axes de recherches. La structuration pourra être obtenue soit en déposant un empilement multicouche sur une surface déjà structurée (par exemple un réseau holographique de période sub-micrométrique) soit par "usinage" (par

exemple par érosion ionique) de l'empilement après dépôt sur une surface plane. Des applications pour ces nouveaux types d'optiques XUV ont déjà été proposées et breveté au cours de ces dernières années.[Polack05, Chapman06] Des premiers résultats ont déjà été obtenus par le passé en collaboration avec le synchrotron Soleil,[Roulliay] et des études sont en cours actuellement pour développer des réseaux multicouches alternés.[Polack07] Ces derniers sont obtenus en déposant sur un réseau une multicouche périodique dont l'épaisseur de chaque couche est égale à la hauteur de marche du réseau (quelques nanomètres). Les deux principaux enjeux, hormis la réalisation du réseau initial, concernent la maîtrise des épaisseurs et des interfaces ainsi que la modélisation des défauts (du réseau et de la multicouche) et de leur influence sur les propriétés optiques du composant.

A plus long terme, on peut imaginer introduire d'autres types de matériau dans les optiques XUV : des matériaux piézoélectriques afin de créer des miroirs « actifs » ou accordables en longueur d'onde ; des matériaux à très faible densité pour diminuer l'absorption et donc améliorer la réflectivité ou encore des matériaux nanostructurés (tel que les nanotubes) pour bénéficier des effets de diffraction.

6 Références

[Abeles] F. Abélès, Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoïdales dans les milieux stratifiés. Application aux couches minces, Ann. de Physique 5 (1950) 596–639.

[Agius] B. Agius, M. Froment et co-auteurs, "Surfaces, interfaces et films minces", éd. Dunod (1990).

[Aigouy] L. Aigouy, Y. De Wilde, C. Frétigny, "Les nouvelles microscopies : à la découverte du nanomonde", éd. Belin, Paris (2006)

[ALS] J. H. Underwood, E. M. Gullikson, M. Koike, P. J. Batson, P. E. Denham, K. D. Franck, R. E. Tackaberry, and W. F. Steele, Rev. Sci. Instrum. **67**, 3372 (1996)
et sur http://www-cxro.lbl.gov/als6.3.2/

[Andre02] Andre-JM; Benbalagh-R; Barchewitz-R; Ravet-MF; Raynal-A; Delmotte-F; Bridou-F; Julie-G; Bosseboeuf-A; Laval-R; Soullie-G; Remond-C; Fialin-M, "X-ray multilayer monochromator with enhanced performance", Appl. Opt. 41, 239 (2002).

[Andre05] J.-M. André, P. Jonnard, C. Michaelsen, J. Wiesmann, F. Bridou, M.-F. Ravet, A. Jérome, F. Delmotte, E. O. Filatova, "La/B4C small period multilayer interferential mirror for the analysis of boron", X-Ray Spectrometry 34, 179 (2005).

[Aquila06] A. L. Aquila, F. Salmassi, F. Dollar, Y. Liu, and E. Gullikson, "Developments in realistic design for aperiodic Mo/Si multilayer mirrors," Opt. Express 14, 10073 (2006).

[Aquila09] A.L. Aquila,"Development of Extreme Ultraviolet and Soft X-Ray Multilayer Optics for Scientic Studies with Femtosecond/Attosecond Sources", PhD dissertation, University of California, Berkeley (2009).

[Artyukov]I,A, Artyukov, Ye,Bugayev, O,Yu, Devizenko, et al, Proc, SPIE, Vol, 5919, 94, 2005.

[Attwood] D. Attwood, "Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation. Principles and applications", Cambridge Univ. Press (1999).

[Azzam] R. M. A. Azzam and N. M. Bashara, "Ellipsometry and polarized light", Edition North-Holland (1987).

[Bajt01] Saša Bajt, D. G. Stearns, P. A. Kearney, “Investigation of the amorphous-to-cristalline transition in Mo/Si multilayers”, J. Appl. Phys., 90, 2001.

[Bajt02] S. Bajt, J. B. Alameda, T. W. Barbee, W. M. Clift, J. A. Folta, B. Kaufmann, and E. A. Spiller, “Improved reflectance and stability of mo-si multilayers,” Optical Engineering 41, 1797 (2002).

[Bajt08] S. Bajt, N.V. Edwards, T. E. Madey, "Properties of ultrathin films appropriate for optics capping layers exposed to high energy photon irradiation", Surface Science Reports 63, 73 (2008).

[Bajt09] S. Bajt et al., "Sub-micron focusing of a soft X-ray Free Electron Laser beam", Proc. of SPIE Vol. 7361, 73610J1-10 (2009).

[Barbee90] T.W. Barbee, “Advances in multilayer x-ray/EUV optics: synthesis, performance, and instrumentation”, Optical Engineering 29, 711 (1990)

[Bhattacharyya] D. Bhattacharyya, D. Joseph, A.K. Poswal, "Characterization of r.f. sputtered thin Mo, W and Si films as precursors to multilayer X-ray mirrors", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 248, 264 (2006).

[Becker] Hans Becker, Frank Sobel, Lutz Aschke, Markus Renno, Jürgen Krieger, Ute Buttgereit, Günter Heß, Frank Lenzen, Konrad Knapp, Sergey Yulin, Torsten Feigl, Thomas Kuhlmann, Norbert Kaiser,

"High-performance 6-inch EUV mask blanks produced under real production conditions by ion-beam sputter deposition", Proceedings of SPIE Vol. 4889, 389 (2002)

[Beigman] I. L. Beigman et al., "Reflection of few-cycle x-ray pulses by aperiodic multilayer structures", J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 4, 433 (2002).

[Benbalagh] Benbalagh,-R.; Andre,-J.--M.; Barchewitz,-R.; Ravet,-M.--F.; Raynal,-A.; Delmotte,-F.; Nridou,-F.; Julie,-G.; Bosseboeuf,-A.; Laval,-R.; Troussel,-P. "Fabrication and characterization of a Mo/Si multilayer monochromator with a narrow spectral bandwidth in the XUV domain", Nuclear-Instruments-&-Methods-in-Physics-Research,-Section-A 458, 650 (2001).

[Brimhall] Nicole F. Brimhall, Amy B. Grigg, R. Steven Turley, and David D. Allred, "Thorium-based mirrors in the extreme ultraviolet", Proceedings of SPIE, 6317, 631710-1 (2006).

[Boher] P. Boher, L. Hennet, and Ph. Houdy, "Three materials soft x-ray mirrors: theory and application," in Advanced X-Ray/EUV Radiation Sources and Applications, J. P. Knaueur and G. K. Shenoy, eds., Proc. SPIE 1345, 198 (1990).

[Delaboudinière] J. -P. Delaboudinière et al., "EIT: Extreme-ultraviolet Imaging Telescope for the SOHO mission", Solar Physics 162, 291 (1995).

[Braun] Stefan Braun, Hermann Mai, Matthew Moss, Roland Scholz and Andreas Leson, "Mo/Si Multilayers with Different Barrier Layers for Applications as Extreme Ultraviolet Mirrors", Jpn. J. Appl. Phys. 41, 4074 (2002).

[Bridou90] F. Bridou and B. Pardo, "Automatic characterization of layers stacks from reflectivity measurements. Application to the study of the validity conditions of the grazing X-rays reflectometry", J. Opt. 21, 183 (1990).

[Bridou02] F. Bridou, R. Mercier, A. Raynal, J. Y Clotaire, C. Colas, P. Fournet, M. Idir, G. Soullie, C. Remond, and P. Troussel, "Large field double Kirkpatrick--Baez microscope with nonperiodic multilayers for laser plasma imaging", Rev. Sci. Instrum. 73, 3789 (2002).

[Briggs] "Practical Surface Analysis by Auger and X-ray Photoelectron Spectroscopy", edited by D. Briggs and M.P. Seah, J. Wiley & Sons (1983).

[Carniglia] C. K. Carniglia and J. H. Apfel, "Maximum reflectance of multilayer dielectric mirrors in the presence of slight absorption," J. Opt. Soc. Am. 70, 523 (1980).

[Chang] Chang Chang, Erik Anderson, Patrick Naulleau, Eric Gullikson, Kenneth Goldberg, and David Attwood, "Direct measurement of index of refraction in the extreme-ultraviolet wavelength region with a novel interferometer," Opt. Lett. 27, 1028-1030 (2002)

[Chao] Weilun Chao, Bruce D. Harteneck, J. Alexander Liddle, Erik H. Anderson and David T. Attwood, "Soft X-ray microscopy at a spatial resolution better than 15 nm", Nature 435, 1210 (2005).

[Chapman01] H.N. Chapman et al., "First lithographic results from the extreme ultraviolet engineering test stand", J. Vac. Sci. Technol. B19 2389 (2001).

[Chapman06] H.N. Chapman, "High-efficiency spectral purity filter for EUV lithography", US Patent 7050237 (2006)

[Chauvineau74] J. P. CHAUVINEAU ET C. PARISET, Sur la Modulation des Franges Entourant la Raie 111 Donnée par un Empilement de Couches Minces Au-Cu-Au, Acta Cryst. (1974). A30, 246

[Chauvineau83] J.P. Chauvineau, « Analyse de multicouches W/C par spectroscopie d'electrons Auger », Thin Solid Films, Volume 109, Pages 353-361 (1983)

[Chauvineau84] J P Chauvineau et al. "The fabrication of multilayers for soft X-rays and extreme ultra-violet mirrors" J. Opt. 15 265-269 (1984).

[Chauvineau92] Jean-Pierre Chauvineau et al., "Description and performance of mirrors and multilayers for the extreme ultraviolet imaging telescope of the SOHO mission", Proc. SPIE 1546, 576 (1992).

[Chu] W.K. Chu, J.W. Mayer and M.A. Nicolet, "Backscattering spectrometry", Academic Press, New York (1978).

[Croce64] P. Croce, G. Devant, J. Reynaud and M.F. Verhaeghe, "Quelques études sur l'état et l'évolution de couches minces d'or, en particulier par des mesures de tensions élastiques ", J. Phys. France 25, 138 (1964).

[Croce70] P Croce et B. Pardo, Sur l'application des couches interférentielles a l'optique des rayons X et des neutrons, Nouvelle Revue d'Optique Appliquée 1 229-232 (1970)

[Croce72] P Croce, L. Névot et B. Pardo, Contribution a l'étude des couches minces par réflexion spéculaire de rayons X, Nouvelle Revue d'Optique Appliquée 3 37-50 (1972)

[CXRO] Les tables d'indices optiques sont accessibles sur: http//www-cxro.lbl.gov

[Da Silva] L. B. Da Silva et al., "Electron Density Measurements of High Density Plasmas Using Soft X-Ray Laser Interferometry", Phys. Rev. Lett. 74, 3991 (1995).

[De Oliveira] N. de Oliveira, D. Joyeux, D. Phalippou, J. C. Rodier, F. Polack, M. Vervloet, and L. Nahon, "A Fourier transform spectrometer without a beam splitter for the vacuum ultraviolet range: From the optical design to the first UV spectrum", Rev. Sci. Instrum. 80, 043101 (2009).

[De Rossi06] S. de Rossi, D. Joyeux, F. Delmotte, B. Ea-Kim, "Métrologie d'indice par interférométrie EUV", J. Phys. IV France 138, 231 (2006).

[De Rossi08] S. de Rossi, D. Joyeux, P. Chavel, N. De Oliveira, M. Richard, C. Constancias, J.Y. Robic, "Probing multilayer stack reflectors by low coherence interferometry in extreme ultraviolet", Applied Optics 47, 12 (2008).

[Davis] C. Davis, "A simple model for the formation of compressive stress in thin films by ion bombardment", Thin Solid Films 226, 30 (1993).

[Delmotte] Delmotte-F; Ravet-MF; Bridou-F; Varniere-F; Zeitoun-P; Hubert-S; Vanbostal-L; Soullie-G, "X-ray-ultraviolet beam splitters for the Michelson interferometer", Appl. Opt. 41, 5905 (2002).

[Desjardins] Desjardins, K. Hustache-Ottini, S. Polack, F. Moreno, T. Dubuisson, J.-M. Chubar, O. Delmotte, F., "The DiagOn : An undulator diagnostic for SOLEIL low energy beamlines", Nuclear Science Symposium Conference Record, NSS '08. IEEE, 2571 (2008).

[Deubner] W. Deubner, “Reflection of x-rays from artificially prepared bodies of laminar structures”, Ann. d. Physik. 5, 261 (1930).

[Devant] G. Devant, thèse Orsay 1969.

[Dobosz] S. Dobosz, H. Stabile, A. Tortora, P. Monot, F. Reau, M. Bougeard, H. Merdji, B. Carre, Ph. Martin, D. Joyeux, D. Phalippou, F. Delmotte, J. Gautier and R. Mercier, " Internal frequency conversion extreme ultraviolet interferometer using mutual coherence properties of two high-order-harmonic sources ", Rev. Sci. Instrum. 80, 113102 (2009).

[Dumond] J.W.M. Dumond and J.P. Youtz, “Selective x-ray diffraction from artificially stratified metal films deposited by evaporation”, Phys. Rev. 48, 703 (1935)

[Eberhart] J.P. Eberhart, "Analyse structurale et chimique des matériaux", éd. Dunod (1989).

[Embury] J.D. Embury, J.P. Hirth, "On dislocation storage and the mechanical response of finescale microstructures", Acta Mater. 42, 2051–2056 (1994)

[Eriksson] F. Eriksson, G. A. Johansson, H. M. Hertz, and J. Birch,"Enhanced soft x-ray reflectivity of Cr/Sc multilayers by ion-assisted sputter deposition", Opt. Eng. 41, 2903 (2002).

[Erko] "Diffraction X-ray optics", A.I. Erko, V. V. Aristov, B. Vidal, Institute Of Physics (1996).

[ESA] Site internet de l'ESA : http://www.esa.int/esaMI/Integral/SEM0W1T1VED_0.html (mise à jour 2004).

[Fabreguette] F.H. Fabreguette, R.A. Wind, S.M. George, Ultrahigh x-ray reflectivity from W/Al2O3 multilayers fabricated using atomic layer deposition, Appl. Opt. Lett. 88, 013116 (2006).

[Feigl] Torsten Feigl, Sergiy Yulin, Nicolas Benoit, Norbert Kaiser, "EUV multilayer optics", Microelectronic Engineering 83, 703 (2006).

[Gautier05a] J. Gautier, F. Delmotte, M. Rouillay, F. Bridou, M. F. Ravet, and A. Jérôme, "Study of normal incidence three component multilayer mirrors in the range 20 nm - 40 nm", Applied Optics 44, 384 (2005).

[Gautier05b] J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, M. F. Ravet, F. Bridou, A. Jerome, A. Giglia, S. Nannarone, "Performances and stability of Sc/Si multilayers with barrier layers for wavelengths around 46 nm", Proceeding SPIE 5963, 270 (2005).

[Gautier05c] J. Gautier, " étude et élaboration de revêtements multicouches pour l'optique extrême UV dans la gamme spectrale 30-50 nm", Thèse de l'Université Paris-Sud effectuée au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (2005).

[Golub] L. Golub, M. Herant, K. Kalata, I. Lovas, G. Nystrom, E. Spiller, and J. Wilczynski, "Subarcsecond observations of the solar x-ray corona," Nature 344, 842 (1990).

[Goulielmakis] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Kleineberg, "Single-Cycle Nonlinear Optics", Science 320, 1614 (2008).

[Guo] Q. H. Guo, J. J. Shen, H. M. Du, E. Y. Jiang and H. L. Bai, "Structure and thermal stability of Mo/Al multilayers for soft x-ray mirrors", J. Phys. D: Appl. Phys. 38, 1936 (2005).

[Guyetand] O. Guyétand, " Photoionisation simple et double à deux couleurs d'atomes de gaz rares", Thèse de l'Université Paris-Sud (2008);
et O. Guyétand et al, "Complete momentum analysis of multi-photon photo-double ionization of xenon by XUV and infrared photons", J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 41 065601 (2008)

[Hardouin04] A. Hardouin, Rapport de stage de fin d'étude au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (2004).

[Hardouin07] A. Hardouin, " Développement de composants optiques asphériques avec traitement de multicouches réflectives pour l'analyse X", Thèse de l'Université Paris-Sud effectuée au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (2007).

[Hardouin08] Aurélie Hardouin, Franck Delmotte, Marie Françoise Ravet, Françoise Bridou, Arnaud Jerome, Françoise Varnière, Claude Montcalm, Sébastien Hedacq, Eric Gullikson, Pascal Aubert, "Development of Cr/Sc multilayer mirrors for the nitrogen Kα-emission line", J. Vac. Sci. Technol. A 26, 333 (2008).

[Hawryluk] A.M. Hawryluk and L. G. Seppala, "Soft x-ray projection lithography using an x-ray reduction camera", J. Vac. Sci. Technol. B 6, 2162 (1988).

[Hecquet06] C. Hecquet, M. Roulliay, F. Delmotte, M.-F. Ravet-Krill, A. Hardouin, and M. Idir, "Réflectomètre à large spectre euv pour la métrologie d'optiques," in 8e Colloque sur les Sources cohérentes et incohérentes UV, VUV et X : Applications et développements récents, (R. Moncorgé and J. Doualan, eds.), vol. 138, 259 (2006).

[Hecquet09a] C. Hecquet, F. Delmotte, M.F. Ravet-Krill, S. de Rossi, A. Jérome, F. Bridou, F. Varnière, E. Meltchakov, F. Auchère, A. Giglia, N. Mahne, S. Nanaronne, Stefano, "Design and performance of two-channel EUV multilayer mirrors with enhanced spectral selectivity", Appl. Phys. A 95, 401(2009)

[Hecquet09b] Christophe Hecquet, "Conception, réalisation et métrologie de miroirs multicouches pour l'extrême ultraviolet résistants aux environnements du spatial et des sources EUV", Thèse de l'Université Paris-Sud effectuée au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (2009).

[Henke] B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, "X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at E = 50–30,000 eV, Z = 1–92," At. Data Nucl. Data Tables 54, 181 (1993).

[Herpen] M. M. J. W. van Herpen, R. W. E. van de Kruijs, D. J. W. Klunder, E. Louis, A. E. Yakshin, S. Alonso van der Westen, F. Bijkerk, and V. Banine, "Spectral-purity-enhancing layer for multilayer mirrors," Opt. Lett. 33, 560 (2008).

[Howard] R. A. Howard et al., "Sun Earth Connection Coronal and Heliospheric Investigation (SECCHI)", Space Science Reviews 136, 67 (2008).

[Hussain] Ahsen M. Hussain, Finn E. Christensen, Giovanni Pareschi, and Henning F. Poulsen, "Novel dc magnetron sputtering facility for space research and synchrotron radiation optics", Proc. SPIE 3444, 443 (1998).

[ISO 21348] International Standard ISO 21348:2007(E), "Space environment (natural and artificial) — Process for determining solar irradiances", First Edition (2007)

[Jenkins] R. Jenkins, in Encyclopedia in Analytical Chemistry, edited by R.A. Meyers (John Wiley & Sons Ltd., Chichester, 2000), pp 13269

[Joyeux99]Denis Joyeux, Francois Polack, and Daniel Phalippou, "An interferometric determination of the refractive part of optical constants for carbon and silver across soft x-ray absorption edges", Rev. Sci. Instrum. 70, 2921 (1999).

[Joyeux09] D. Joyeux, N. de Oliveira, D. Phalippou, J.-C. Rodier, K. Ito, L. Nahon, M. Vervloet, F. Polack and M. Roujdane, "Spectrométrie VUV par transformation de Fourier à très haute résolution : état et performances du nouvel instrument installé à SOLEIL", UVX 2008, 77, DOI: 10.1051/uvx/2009013 (2009)

[Kazamias] S. Kazamias, K. Cassou, D. Ros, F. Plé, G. Jamelot, A. Klisnick, O. Lundh, F. Lindau, A. Persson, and C.-G. Wahlström, S. de Rossi, D. Joyeux, B. Zielbauer, D. Ursescu, and T. Kühl, "Characterization of a transient collisional Ni-like molybdenum soft-x-ray laser pumped in grazing incidence", Phys. Rev. A 77, (2008)

[Kearney] P. A. Kearney, "New materials for multilayer soft x-ray optics for wavelengths below 124 angstrom by sputtering and molecular beam epitaxy", PhD dissertation, University of Arizona (1994).

[Keski-Kuha85] R.A.M. Keski-Kuha et al.,"Layered Synthetic Microstructures for Solar EUV Telescopes", SPIE vol. 563, 299 (1985).

[Kim] Dong-Eon Kim, Soo-Mi Lee, In-Joon Jeon, M. Yanagihara, "Characterization of a multilayer soft X-ray reflector fabricated by pulsed laser deposition", Applied Surface Science, 127-129, 531 (1998).

[Kinoshita89] H. Kinoshita, K. Kurihara, Y. Ishii, and Y. Torii, "Soft X-Ray Reduction Lithography Using Multilayer Mirrors", J. Vac. Sci. Technol. B 7, 1648 (1989).

[Kinoshita05] H. Kinoshita, "History of extreme ultraviolet lithography", JVST B 23, 2584 (2005).

[Kirz85] J. Kirz and H. Rarback, "Soft x-ray microscopes", Rev. Sci. Instrum. 56, 1 (1985).

[Larruquert01] J. I. Larruquert, “Reflectance enhancement with subquarterwave multilayers of highly absorbing materials,” Opt. Soc. Am. A 18, 1406 (2001).

[Larruquert02] J. I. Larruquert, “New layer-by-layer multilayer design method,” Opt. Soc. Am. A 19, 385 (2002) et J. I. Larruquert, “Reflectance enhancement in the extreme ultraviolet and soft x rays by means of multilayers with more than two materials,” Opt. Soc. Am. A 19, 391 (2002).

[LeGuen] K. Le Guen, H. Maury, J.-M. André, P. Jonnard, A. Hardouin, F. Delmotte, and M.-F. Ravet-Krill, "X-ray spectroscopic application of Cr/Sc periodic multilayers", Appl. Phys. Lett. 91, 234104 (2007).

[Lodha] G.S. Lodha et al., Vacuum 60, 385 (2001)

[Louis] E. Louis et al., "Enhancement of reflectivity of multilayer mirrors for soft x-ray projection lithography by temperature optimization and ion bombardment", Microelectronic Engineering 23, 215 (1994).

[Lowenthal] S. Lowenthal, “Two and Three dimensional imaging of laser plasma X-Rayes”, SPIE Vol. 831, XX

[Macleod] H.A. Macleod, "Thin-Film Optical Filters", 2nd ed. Hilger, Bristol (UK), p. 59 (1986)

[Mairesse] Y. Mairesse et al, “Attosecond synchronisation of high-harmonic soft x-rays,” Science 302, p. 1540, 2003.

[Mao] Peter H. Mao, Fiona A. Harrison, Yuriy Y. Platonov, David M. Broadway, Brian DeGroot, Finn E. Christensen, William W. Craig, and Charles J. Hailey, "Development of grazing incidence multilayer mirrors for hard x-ray focusing telescopes", Proc. SPIE 3114, 526 (1997).

[Maury06] H. Maury, P. Jonnard, J.-M. André, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, F. Delmotte, M.-F. Ravet, A. Jérome and P. Holliger, "Non-destructive X-ray study of the interphases in Mo/Si and Mo/B4C/Si/B4C multilayers", Thin Solid Films 514, 278 (2006).

[Maury07] H. Maury, " Relations entre les caractéristiques structurales de miroirs multicouches et leurs propriétés optiques dans le domaine X-UV", Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris (2007).

[McCrackin] F. L. McCrackin et al., “Measurement of the thickness and refractive index of very thin films and the optical properties of surfaces by ellipsometry”, Journal of Research of the National Bureau of Standards-A 67A, 363 (1963).

[Meltchakov] E. Meltchakov et al., "Development of Al-based multilayer optics for EUV", Appl. Phys. A, DOI 10.1007/s00339-009-5445-2, published online 15 October 2009.

[Meiling] Hans Meiling et al., "EUVL system: moving towards production", Proc. SPIE 7271, 727102 (2009).

[Menesguen] Y. Ménesguen, S. de Rossi, E. Meltchakov and F. Delmotte, "Aperiodic multilayer mirrors for efficient broadband reflection in the extreme ultraviolet", Appl. Phys. A, DOI 10.1007/s00339-009-5400-2, published online 19 September 2009.

[Mertins] H.Ch. Mertins, F. Schaefers, H. Grimmer, D. Clemens, P. Boeni, M. Horisberger, Applied Optics 37, 1873 (1998)

[Michaelsen] C. Michaelsen, J. Wiesmann, C. Hoffmann, K. Wulf, L. Brügemann, A. Storm, "Recent Developments of Multilayer Mirror Optics for Laboratory X-ray Instrumentation", Proc. SPIE, Vol. 4782, 143 (2002).

[Montcalm95] C. Montcalm, "Système de dépôt-réflectomètre UHV pour l'étude des miroirs multicouches XUV à incidence normale pour les longueurs d'onde inférieures à 12 nm", Thèse, Université du Québec (1995).

[Montcalm98] C, Montcalm, S, Bajt, P, Mirkarimi, E, Spiller, F, Weber, J, Folta, SPIE Vol, 3331 (1998).

[Morawe] Christian Morawe, Eric Ziegler, Jean-Christophe Peffen, Igor V. Kozhevnikov, "Design and fabrication of depth-graded X-ray multilayers ", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 493, 189 (2002).

[Morlens06] A.S. Morlens et al., Design and characterization of extreme ultraviolet broadband mirrors for attosecond science, Optics Letters, Vol. 31, Issue 10, pp. 1558-1560 (2006)

[Murakami] Katsuhiko Murakami and Masayuki Shiraishi, "Development of Mo/Si multilayers deposited by low-pressure rotary magnet cathode sputtering for EUV lithography", Proc. SPIE 5193, 145 (2004).

[Naccache] Thèse de 3ème cycle de l'Université Paris 6 (1983).

[Nagler] Bob Nagler et al., "Turning solid aluminium transparent by intense soft X-ray photoionization", Nature Physics 5, 693 (2009).

[Nannarone] S. Nannarone, F. Borgatti, A. Deluisa, B. P. Doyle, G. C. Gazzadi, A. Giglia, P. Finetti, N. Mahne, L. Pasquali, M. Pedio, G. Selvaggi, G. Naletto, M. G. Pelizzo, and G. Tondello, “The bear beamline at elettra,” in American Institute of Physics Conference Series (T. Warwick, J. Arthur, H. A. Padmore, and J. Stöhr, eds.), vol. 705 of American Institute of Physics Conference Series, 450 (2004).

[NASA] Site internet : NASA’s High Energy Astrophysics Science Archive Research Center de la NASA : http://heasarc.nasa.gov/docs/heasarc/headates/spectrum.html (mise à jour 2008).

[Nevot80] L. Névot et P. Croce, Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons X. Application à l’étude du polissage de quelques verres silicates, Revue Phys. Appl. 15 761-779 (1980)

[Nevot88] L. Nevot et al. « Characterization of X-UV multilayers by grazing incidence X-ray reflectometry », Phys Appl 23, 1675 (1988).

[Pardo88] B. Pardo, T. Megademini, J.M. André, "X-UV synthetic interference mirrors : theoretical approach", Rev. Phys. Appl. 23, 1579 (1988).

[Paul] P. Paul et al, “Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation,” Science 292, pp. 1689–1692, 2001.

[Polack95] F. Polack, D. Joyeux, J. Svatos, and D. Phalippou, "Applications of wavefront division interferometers in soft x rays", Rev. Sci. Instrum. 66, 2180 (1995).

[Polack05] F. Polack et al., "Two-Dimensional Diffraction Network With Alternating Multilayer Stacks And Method For The Production Thereof And Spectroscopic Devices Comprising Said Networks", European Patent Application EP1700141 (2005).

[Polack07] F. Polack, B. Lagarde, M. Idir, A. Liard Cloup, E. Jourdain, M. Roulliay, F. Delmotte, J. Gautier, and M-F. Ravet-Krill, "Alternate Multilayer Gratings with Enhanced Diffraction Efficiency in the 500--5000 eV Energy Domain", AIP Conf. Proc. 879, 489 (2007)

[Ravet] Marie-Francoise Ravet, Francoise Bridou, Xueyan Zhang-Song, Arnaud Jerome, Franck Delmotte, Raymond Mercier, Marie Bougnet, Philippe Bouyries, and Jean-Pierre Delaboudiniere, "Ion beam deposited Mo/Si multilayers for EUV imaging applications in astrophysics", Proc. SPIE 5250, 99 (2004).

[Rochus] P. Rochus et al., "MAGRITTE: an instrument suite for the solar Atmospheric Imaging Assembly (AIA) aboard the Solar Dynamics Observatory", Proceedings-of-the-SPIE 5171, 53 (2004).

[Rosenbluth] A.E. Rosenbluth, "Computer search for layer materials that maximize the reflectivity of X-ray multilayers", Rev. Phys. Appl. (Paris) 23, 1599 (1988).

[Roulliay] M. Roulliay, “Mise en place et caractérisation d'un bâti de dépôt de couches minces”, Rapport de Stage ingénieur CNAM au Laboratoire Charles Fabry de l’Institut d’Optique (2003).

[Sae-Lao] B. Sae-Lao and C. Montcalm, Optics Letters 26, 468 (2001).

[Seely] J. F. Seely, C. M. Brown, D. L. Windt, S. Donguy, B. Kjornrattanawanich, “Normal-Incidence Efficiencies of Multilayer-Coated Laminar Gratings for the Extreme-Ultraviolet Imaging Spectrometer on the Solar-B Mission”, Applied Optics 43, 1463 (2004).

[Singh] M. Singh and J. J. M. Braat, “Design of multilayer extreme ultraviolet mirrors for enhanced reflectivity,” Appl. Opt. 39, 2189 (2000).

[Srolovitz] D. J. Srolovitz, S.M. Yalisove, J.C. Bilello, "Design of multiscalar metallic multilayer composites for high-strength, high toughness, and low CTE mismatch", Metall. Trans. A 26, 1805–1813 (1995)

[Smith] Raymond F. Smith et al., "Longitudinal coherence measurements of a transient collisional x-ray laser," Opt. Lett. 28, 2261 (2003).

[Souffli01] R. Soufli et al., "Emerging Lithographic Technologies", Proc. SPIE 4343, 51 (2001).

[Souffli08] R. Souffli, A. L. Aquila, F. Salmassi, M. Fernández- Perea, and E. M. Gullikson, "Optical constants of magnetron-sputtered boron carbide thin films from photoabsorption data in the range 30 to 770 eV", Appl. Opt. 47, 4633 (2008).

[Spiller72] Eberhard Spiller, "Low-Loss Reflection Coatings Using Absorbing Materials", Appl. Phys. Lett. 20, 365 (1972).

[Spiller76] E. Spiller, R. Feder, J. Topalian, D. Eastman, W. Gudat and D. Sayre, “X-ray Microscopy of Biological Objects with Carbon Kα and with Synchrotron Radiation”, Science 191, 1172 (1976).

[Spiller81] E. Spiller, "Lox Energy X-ray Diagnostic", AIP Conf. Proc. 75, 124, D.T. Attwood, B.L. Henke, eds. New York, 1981.

[Spiller88] E. Spiller, "Multilayer optics for soft x-rays" in Physics, Fabrication, and Applications of Multilayered Structures, P.Dhez and C. Weisbuch, eds. (Plenum, New York), p. 284 (1988).

[Spiller94] E. Spiller, "Soft X-Rays Optics", SPIE Optical Engineering Press, Bellingham (1994).

[Stearns] D. G. Stearns, R. S. Rosen, and S. P. Vernon, "Fabrication of high-reflectance Mo-Si multilayer mirrors by planar-magnetron sputtering," J. Vac. Sc. Technol A 9, 2662 (1991).

[Takenaka] Hisataka Takenaka, Tomoaki Kawamura, Tsuneyuki HagaHiroo KinoshitaYoshikazu Ishii, "Evaluation of Large-Area Mo/Si Multilayer Soft X-Ray Mirrors Fabricated by RF Magnetron Sputtering ", Jpn. J. Appl. Phys. 34, 5027 (1995).

[Takenaka98] H. Takenaka, H. Ito, T. Haga, and T. Kawamura, “Design and fabrication of highly heat-resistant mo/si multilayer soft x-ray mirrors with interleaved barrier layers,” Journal of Synchrotron Radiation 5, 708 (1998).

[Takenaka01] H. Takenaka et al., "Soft X-ray reflectivity and structure evaluation of CoCr/C multilayer X-ray mirrors for spectral region around 6 nm", Nucl. Instr. and Meth. in Physics Research A 467–468, 337 (2001).

[Takenaka05] Hisataka Takenaka et al., Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena 144-147, 1047 (2005).

[Tang] H. Tang, O. Guilbaud, G. Jamelot, D. Ros, A. Klisnick, D. Joyeux, D. Phalippou, M. Kado, M. Nishikino, M. Kishimoto, K. Sukegawa, M. Ishino, K. Nagashima and H. Daido, " Diagnostics of laser-induced plasma with soft X-ray (13.9 nm) bi-mirror interference microscopy ", Applied Physics B 78, 975 (2004).

[Tarrio] C. Tarrio, R. N.Watts, T. B. Lucatorto, J. M. Slaughter, and C. M. Falco, Applied Optics 37, 4100(1998)

[Tikhonravov] Alexander V. Tikhonravov, Michael K. Trubetskov, and Gary W. DeBell, "Application of the needle optimization technique to the design of optical coatings," Appl. Opt. 35, 5493 (1996).

[Underwood81] J.H. Underwood, T.W. Barbee and C. Frieber, “Soft X-ray imaging with normal incidence mirror”, Nature 294, 429 (1981).

[Underwood86] J.H. Underwood, T.W. Barbee and C. Frieber, Appl. Opt. 25, 1730 (1986).

[Underwood87] J.H. Underwood et al., “X-ray Photographs of a Solar Active Region with a Multilayer Telescope at Normal Incidence”, Science 238, 61 (1987).

[Uspenskii97] Y.A Uspenskii S. V. Antonov, V. Y. Fedotov, Alexander V. Vinogradov.“Optical properties of 3d-transition metals in the spectral interval of interest for discharge pumped XUV laser”, Proc SPIE in Soft X-Ray Lasers and Applications II; Jorge J. Rocca, Luiz B. Da Silva; Eds 3156,288-294 (1997)

[Uspenskii00] Y.A. Upspenskii, V.E Levashov,A.V Vinogradov, A.I. Fedorenko, V.V Kondratenko, Yu. P. Pershin, E.N. Zubarev, S. Mrowka, F. Schäfers,” Sc/Si normal incidence mirrors for VUV interval 35-50 nm “ Nucl. Inst Meth in Phys. Res. A 448, 147-151 (2000)

[Uspenskii04] Yu. A. Uspenskii, John F. Seely, N. L. Popov, A. V. Vinogradov, Yu. P. Pershin, V. V. Kondratenko, “Efficient method for the determination of extreme-ultraviolet optical constants in reactive materials: application to scandium and titanium”, JOSA A, 21, 298-305 (2004).

[Voronov] D.L. Voronov, E.N. Zubarev, V.V. Kondratenko, Yu.P. Pershin, V.A. Sevryukova and Ye.A. Bugayev, "Study of fast diffusion species in Sc/Si multilayers by W-based marker analysis ", Thin Solid Films 513, 152 (2006).

[Walker] A. B. C. Walker, J. T. W. Barbee, R. B. Hoover, and J. F. Lindblom, “Soft x-ray images of the solar corona with a normal incidence Cassegrain multilayer telescope,” Science 24, 1781 (1988).

[Wang00] Z. Wang and A. Michette “Broadband multilayer mirrors for optimun use of soft x-ray source output”, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 2, 452-457 (2000).

[Wang06] Zhanshan Wang, Hongchang Wang, Jingtao Zhu, Fengli Wang, Zhongxiang Gu, Lingyan Chen, Alan G. Michette, A. Keith Powell, Slawka J. Pfauntsch, and Franz Schafers, "Broadband multilayer polarizers for the extreme ultraviolet", J. Appl. Phys. 99, 056108 (2006).

[Windischmann] H. Windischmann, "Intrinsic Stress In Sputter-Deposited Thin Films," Critical Reviews In Solid State And Materials Sciences, 17, 547 (1992).

[Windt94] D. L. Windt and W. K. Waskiewicz, "Multilayer facilities required for extreme-ultraviolet lithography", J. Vac. Sci. Technol. B, 12, 3826 (1994).

[Windt98] D.L. Windt, "IMD — Software for modeling the optical properties of multilayer films", Comput. Phys. 12, 360 (1998).

[Windt02] D. L. Windt, E. M. Gullikson, C. C. Walton, "Normal-incidence reflectance of optimized W/B4C X-ray multilayers in the range 1.4 nm < lambda < 2.4 nm", Opt. Lett., 27, 2212-2214 (2002).

[Windt09] D. L. Windt, J. A. Bellotti, B. Kjornrattanawanich, and J. F. Seely, "Performance optimization of Si/Gd extreme ultraviolet multilayers", App. Opt. 48, 5502 – 5508 (2009)

[Wonisch] A. Wonisch, U. Neuhäusler, N. M. Kabachnik, T. Uphues, M. Uiberacker, V. Yakovlev, F. Krausz, M. Drescher, U. Kleineberg, and U. Heinzmann, "Design, fabrication, and analysis of chirped multilayer mirrors for reflection of extreme-ultraviolet attosecond pulses," Appl. Opt. 45, 4147 (2006).

[Wu] Banqiu Wu and Ajay Kumar, "Extreme ultraviolet lithography: A review", J. Vac. Sci. Technol. B 25,1743 (2007).

[Wuelser] Jean-Pierre Wuelser et al., "EUVI: the STEREO-SECCHI extreme ultraviolet imager", Proc. SPIE 5171, 111 (2004).

[Yamamoto] M. Yamamoto et al. « Layer-by-layer design method for soft-x-ray multilayers » Appl. Op. 31, 1622 (1992).

[Yamamoto92] Masaki Yamamoto and Takeshi Namioka, "In situ ellipsometric study of optical properties of ultrathin films," Appl. Opt. 31, 1612 (1992).

[Yulin04] Sergiy A. Yulin, Franz Schaefers, Torsten Feigl, and Norbert Kaiser, “Enhanced reflectivity and stability of Sc/Si multilayers”, Proc. SPIE 5193, 155 (2004)

[Yulin06] Sergiy Yulin, Nicolas Benoit, Torsten Feigl and Norbert Kaiser, "Interface-engineered EUV multilayer mirrors", Microelectronic Engineering 83, 692-694 (2006)

Annexe A : liste des équipements de dépôt de multicouches pour l'optique XUV[24]

Méthode	laboratoire	pays	remarque	référence
pulvérisation cathodique magnétron	AXO Dresden GmbH	Allemagne	DC	dresden.de
	Fraunhofer IOF, Jena	Allemagne	DC	[Feigl, Yulin04]
	Beam Technology, Dresden	Allemagne	DC	[Braun]
	Incoatec	Allemagne		[Michaelsen]
	Tianjin University	Chine	DC	[Guo]
	Tongji University	Chine		[Wang06]
	Danish National Space Center	Danemark	DC	[Hussain]
	ESRF	France	DC/RF	[Morawe]
	LCFIO	France	DC/RF	[Gautier05]
	Xenocs	France		[Hardouin]
	Bhabha Atomic Research Centre	Inde	RF	[Bhattacharyya]
	Nikon	Japon	DC	[Murakami]
	NTT	Japon	RF	[Takenaka]
	Institute of Scientific Instruments	République Tchèque	RF	http://www.isibrno.cz
	Linkoping Univ.	Suède		[Eriksson]
	Kharkov State Polytechnic University	Ukraine	DC	[Voronov]
	RXO LLC	USA	DC	[Windt94]
	LLNL	USA	DC	[Souffli01]
	Brigham Young University	USA	DC	[Brimhall]
	Arizona State Univ.	USA	DC/RF	[Kearney]
	Rigaku (Osmic)	USA		[Mao]
	CXRO	USA		[Aquila06]
pulvérisation par faisceau d'ions	Schott Lithotec AG	Allemagne	assisté (DIBS)	[Becker]
	LCFIO	France		[Ravet]
	Tohoku University	Japon		[Yamamoto92]
	LLNL	USA		[Souffli01]
évaporation	Bielfield Univ.	Allemagne	assisté par faisceau d'ions	[Wonisch]
	Centre for Advanced Technology, Synchrotron Radiation Utilization	Inde		[Lodha]
	FOM-Institute for Plasma Physics	Pays-bas	avec "polissage" par faisceau d'ions	[Louis]
ablation laser	Beam Technology, Dresden	Allemagne		[Braun]
	Pohang Univ.	Corée		[Kim]

[24] Cette liste non exhaustive a été établie à partir des informations recueillies lors des conférences Physics of X-Ray Multilayer Structures depuis 2000 et complétée par des recherches bibliographiques. Les données sont classées par méthode de dépôt puis par pays.

Annexe B : notations utilisées dans ce manuscrit

λ : longueur d'onde du rayonnement électromagnétique

$\varphi_{j,i,}$: déphasage associé à la réflexion sur l'interface j/i = Arg ($r_{j,i}$)

θ : angle de rasance (angle entre le rayonnement incident et la surface du miroir)

AR : couche anti reflet

d : épaisseur d'une période d'un empilement périodique

E : énergie du rayonnement électromagnétique

e_i : épaisseur de la couche i

f_1 et f_2: partie réelle et partie imaginaire du facteur de diffusion atomique

k (k_i): coefficient d'absorption (de la couche i)

N : nombre de périodes d'un empilement périodique

N_{at} : nombre d'atomes par unité de volume

$\tilde{n}$ ($\tilde{n}_i$): indice complexe (de la couche i)

n (n_i): indice de réfraction (de la couche i)

R : réflectivité de l'empilement

$r_{j,i}$: coefficient de réflexion en amplitude du champ électrique à l'interface j/i

r_0 : rayon classique de l'électron

T : transmission de l'empilement

$t_{j,i}$: coefficient de transmission en amplitude du champ électrique à l'interface j/i

Annexe C : Curriculum Vitae

Franck DELMOTTE

Institut d'Optique
Campus Polytechnique, RD128
91127 Palaiseau cedex, France
tél. 01 64 53 32 60
franck.delmotte@institutoptique.fr

Situation actuelle

Maître de Conférence à l'Université Paris-Sud (63ème section du CNU)
Enseignement dispensé à l'Institut d'Optique *Graduate School*
Recherche effectuée au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (CNRS UMR 8501)

Diplômes & Parcours

1995 **Ingénieur** de l'Institut Supérieur d'Electronique de Paris.
1995 **DEA** de micro-électronique à l'université Paris VII, option technologie de fabrication. Mention bien.
1998 **Docteur en sciences** de l'Université Paris-Sud, discipline : électronique, capteurs et circuits intégrés, mention très honorable avec les félicitations du jury.
Thèse soutenue le 13 mai 1998 à l'Institut d'Optique.
Titre de la thèse : Dépôts de films minces SiNx assistés par plasma de haute densité. Etudes corrélées de la phase gazeuse, de l'interface SiNx/InP et de la passivation du transistor bipolaire à hétérojonction InP.
Directeur de thèse : Prof. Bernard Agius.
1998-99 : ATER à l'Université Paris-Sud.
depuis septembre 1999 : Maître de Conférence à l'Université Paris-Sud.

Activités d'enseignements

J'assure mon service d'enseignement au sein de l'Institut d'Optique *Graduate School*, dans les trois années du cycle de formation d'ingénieur : cours d'électronique numérique (1A), cours d'électronique analogique (1A), travaux pratiques et projets d'électronique analogique (2A), cours et TP de Couches minces et Microtechnologies (3A).

Concernant l'enseignement de Master 2, j'assure la responsabilité du module « Couches Minces et Microsystèmes Optiques ». Ce module vise à donner aux étudiants les connaissances en microtechnologie nécessaires à la compréhension des Microsystèmes Optiques (MOEMS). Il se base sur 30 H de cours et 30H de travaux pratiques dans la salle blanche de l'Institut d'Optique et dans la plateforme de technologie commune Thales/X/Institut d'Optique.

J'ai également participé en 2008 à la création d'un nouveau module d'enseignement de master 2 intitulé « Optique de l'Extrême », centré sur l'optique et les applications dans le domaine extrême UV.

Activités liées à l'administration

Depuis 2006 : Membre élu du conseil de laboratoire du LCFIO
2001-2003 et depuis 2007 : Membre élu de la Commission de Spécialistes de la 63ème section de l'Université Paris-Sud.
Depuis 2007 : Responsable des stages (France et étranger) pour les élèves de l'Institut d'Optique (cycles ingénieur et master)
1999-2007 : Responsable des stages à l'étranger pour les élèves de 2ème et 3ème année de l'Ecole Supérieure d'Optique.
depuis 2003 : Responsable du module d'enseignement de 3ème année « Couches Minces et Microsystèmes Optiques ».

Activités d'animation liées à la recherche

Depuis 2008 : Responsable de l'équipe « Optique XUV » au LCFIO composée actuellement de 5 permanents, 2 postdoctorants, un doctorant.
Coordinateur du projet RTRA Triangle de la Physique Atto-Optique.
Responsable du projet PENDOX (financement ASTRE du conseil général de l'Essonne).
Depuis 2007 : Coordinateur du projet ANR blanc ATTOMIX.
2008 : Membre du comité scientifique de la conférence internationale Physics of X-ray Multilayer Structure (9ème édition)
Membre du comité scientifique du 9ème Colloque sur les Sources Cohérentes et Incohérentes UV, VUV et X (UVX2008)
2002-2005 : Co-responsable du Programme Pluriformation « Centrale d'Elaboration et de Métrologie d'Optiques XUV du Pôle d'optique des Rayons X d'Orsay ».
Co-responsable de l'équipe-projet « PRaXO », composante de l'équipe-projet « Lithographie EUV » du RTP « Nanominiaturisation » du CNRS-STIC.

Encadrement

Stages M2 / DEA : 3
Aurélie Hardouin (janvier à août 2004), co-encadrement à 50%, « Maîtrise des performances et de la réalisation de revêtements multicouches pour des optiques dans le domaine de l'extrême UV ».
Samir BOUJDAYANE (mars à juin 2002), encadrement à 100%, « Etude de la stabilité des miroirs interférentiels multicouches », 1 article.
Hyon-Suk JO (mars à juin 2002), co-encadrement à 50%, « Multicouches pour l'Optique X-UV : Etude de rugosité et des effets sur la réflectivité ».
Doctorants : 4
Julien Gautier (2002-2005) « Développement de nouvelles multicouches dans la gamme 30- 50 nm ». Co-encadrement à 90%, 2 articles, 5 actes de conférence.
Aurélie Hardouin (2004-2007), encadrement à 100% autorisé par le Conseil Scientifique de l'Université Paris Sud, « Développement de composants optiques asphériques avec traitement de multicouches réflectives pour l'analyse X », 2 articles, 2 actes de conférence.
Christophe Hecquet (2005-2009), co-encadrement à 50%, « conception, réalisation et métrologie de miroirs multicouches pour l'EUV résistants aux environnements du spatial et des sources EUV », 3 articles, 5 actes de conférence.
Charles Bourassin-Bouchet (2008-), co-encadrement à 50%, "Composants Optiques pour les sources d'impulsion attoseconde", un article soumis, un acte de conférence.

Post-doctorant : 4
Yves Menesguen (septembre à décembre 2008) dans le cadre de l'ANR ATTOMIX, 2 articles, 1 acte de conférence (contrat interrompu pour cause d'embauche au CEA).
Fadi Choueikani (8 mois à partir de septembre 2009) dans le cadre de l'ANR ATTOMIX.
Ahmed Ziani (12 mois renouvelables à partir de novembre 2009) dans le cadre d'un contrat R&T CNES.
Hélène Maury (postdoctorante au CEA de bruyère le Chatel, nov. 2007 - nov. 2009), dans le cadre d'un contrat de collaboration CEA/Institut d'Optique.

Synthèse de travaux et description de principaux résultats

Depuis septembre 1999, j'effectue mes activités de recherche au sein de l'équipe « Optique X-UV » du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique. Ma nomination sur un poste de Maître de Conférence a été pour moi l'occasion d'une mobilité thématique : même si les techniques utilisées pour le dépôt et la caractérisation de matériaux en films minces sont proches de celles utilisées pendant ma thèse et mon année d'ATER, les applications visées et par conséquent les propriétés recherchées sont elles très différentes (mobilité du domaine de l'électronique vers celui de l'optique) et la communauté dont je fais partie est largement différente.

Les deux axes majeurs de recherche de l'équipe « Optique X-UV » concernent d'une part l'étude et le développement de nouvelles structures multicouches dans le domaine X-UV (longueurs d'ondes de 1 à 60 nm) et d'autre part l'étude et le développement de systèmes optiques X-UV utilisant notamment les composants multicouches précédents. Mes activités de recherches suivent également ces deux thématiques et portent à la fois sur l'étude des matériaux en films minces et multicouches et l'étude des propriétés optiques des multicouches et des composants réalisés. Mes principaux thèmes de recherches sont les suivants :

- Développement et calibration de lames séparatrices à 13.9 nm et 14.7 nm. Ces composants, réalisés à partir de dépôts d'empilement multicouches sur des membranes minces (100 nm d'épaisseur) ont permis pour la première fois la réalisation d'un interféromètre de Michelson dans l'EUV (Collaboration avec le LIXAM).
- Participation à l'étude et à la réalisation du double télescope imageur EUV pour la mission STEREO (mission NASA). Les 2 télescopes jumeaux, lancés en octobre 2006, ont permis d'obtenir les premières images 3D du Soleil en février 2007 et sont toujours en activité aujourd'hui.
- Etude et caractérisation de nouveaux revêtements multicouches pour la gamme 30 – 50 nm : co-encadrement de la thèse de Julien Gautier (2002-2005). Les principaux résultats obtenus concernent d'une part le développement de multicouches à base de scandium permettant de réfléchir efficacement les rayonnements de longueurs d'onde comprises entre 40 et 50 nm et d'autre part la conception de multicouches à trois matériaux par période qui apporte un gain substantiel de réflectivité dans la gamme 30-40 nm.
- Mise en place d'une collaboration avec la société Xenocs sur le réalisation de composants optiques asphériques pour l'analyse X : encadrement de la thèse CIFRE d'Aurélie Hardouin (2004-2007). La première partie du travail a consisté à étudier et optimiser des multicouches Cr/Sc de faible période pour réfléchir la raie Kα de l'azote (3.16nm) et à développer des procédés de traitements à gradient de période latéral adaptés au dépôt sur des optiques asphériques. Les résultats obtenus ont ensuite été transférés sur la machine de dépôt de la société Xenocs et ont permis de réaliser plusieurs optiques focalisantes pour des applications en analyse X.
- Etude de l'endommagement des optiques XUV dans les environnements du spatial et de la lithographie EUV : co-encadrement de la thèse de Christophe Hecquet dans le cadre d'une collaboration avec le CNES et SAGEM.
- Dans la continuité des travaux menés par le passé pour la réalisation d'imageurs EUV pour le spatial (mission STEREO de la NASA), j'ai participé à la réponse à appel d'offre de l'ESA pour la mission Solar Orbiter. Au sein d'un consortium européen pour la réalisation de l'imageur EUV, j'ai pris la responsabilité de Co-Investigator pour le traitement multicouche des miroirs des imageurs EUV. Notre consortium a été sélectionné dans le cadre du programme Cosmic Vision de l'ESA.
- Etude des phénomènes aux interfaces dans les empilements multicouches : mise en place d'une collaboration avec le LCPMR (équipe de P. Jonnard) pour l'étude de la composition des interfaces

dans le système multicouche Mo/Si et de l'influence des couches « barrières » (0.3 à 1 nm de B_4C) sur cette composition. Cette collaboration a donné lieu à plusieurs articles et nous a servi de base pour monter un projet ANR (voir le point suivant)
- Etude de miroirs multicouches pour les impulsions attosecondes (Coordinateur du projet ANR blanc ATTOMIX accepté en 2007). L'objectif de ce projet est de concevoir, réaliser et caractériser des miroirs de phase pour impulsions attosecondes, en s'appuyant sur des mesures fiables des indices des matériaux en couches minces et en combinant des analyses optiques et physico-chimiques des matériaux et interfaces.
- Conception et réalisation de miroirs multicouches pour une communauté scientifique très pluridisciplinaire dans le cadre de la centrale CEMOX (Centrale d'Elaboration et de Métrologie des Optiques XUV). Plus de 50 optiques spécifiques ont ainsi été réalisées entre 2004 et 2008 pour différents laboratoires (LIXAM, LOA, CEA Saclay, synchrotron SOLEIL, CEA Bruyère…). J'ai notamment assuré la formation et l'encadrement de plusieurs étudiants des laboratoires partenaires (LOA, SOLEIL, LCPMR) ainsi que de 2 doctorants étrangers venus travailler sur la machine de dépôt de CEMOX.

Production scientifique

Au total : 30 revues internationales à comité de lecture
25 actes de conférences
2 conférences invitées

Liste des publications et conférences sur le période 2000-2010

Revues internationales à comité de lecture :

E. Meltchakov, C. Hecquet, M. Roulliay, S. De Rossi, Y. Menesguen, A. Jérome, F. Bridou, F. Varniere, M.-F. Ravet-Krill, **F. Delmotte**
Development of Al-based multilayer optics for EUV
Appl. Phys. A, DOI 10.1007/s00339-009-5445-2, published online 15 October 2009.

Y. Ménesguen, S. de Rossi, E. Meltchakov and **F. Delmotte**
Aperiodic multilayer mirrors for efficient broadband reflection in the extreme ultraviolet
Appl. Phys. A, DOI 10.1007/s00339-009-5400-2, published online 19 September 2009.

S. Dobosz, H. Stabile, A. Tortora, P. Monot, F. Reau, M. Bougeard, H. Merdji, B. Carre, Ph. Martin, D. Joyeux, D. Phalippou, **F. Delmotte**, J. Gautier, and R. Mercier
Internal frequency conversion extreme ultraviolet interferometer using mutual coherence properties of two high-order-harmonic sources
Rev. Sci. Instrum. 80, 113102 (2009).

C. Hecquet, **F. Delmotte**, M.F. Ravet-Krill, S. de Rossi, A. Jérome, F. Bridou, F. Varnière, E. Meltchakov, F. Auchère, A. Giglia, N. Mahne, S. Nanaronne
Design and performance of two-channel EUV multilayer mirrors with enhanced spectral selectivity
Appl. Phys. A 95, 401 (2009)

M. A. Barstow et al.
Stellar And Galactic Environment survey (SAGE)
Experimental Astronomy 23, 169-191 (2009)

R. A. Howard et al.
Sun Earth Connection Coronal and Heliospheric Investigation (SECCHI)
Space Science Reviews 136, 67 (2008).

Aurélie Hardouin, **Franck Delmotte**, Marie Françoise Ravet, Françoise Bridou, Arnaud Jerome, Françoise Varnière, Claude Montcalm, Sébastien Hedacq, Eric Gullikson, Pascal Aubert
Development of Cr/Sc multilayer mirrors for the nitrogen Kα-emission line
J. Vac. Sci. Technol. A 26 (2008)

Julien Gautier, **Franck Delmotte**, Marie Françoise Ravet, Arnaud Jérome, Françoise Bridou, Francoise Varnière and Frédéric Auchère
Two channel multilayer mirrors for astrophysics
Optics Communications 281, 3032–3035 (2008)

J. Gautier, **F. Delmotte**, F. Bridou, M.F. Ravet, F. Varniere, M. Roulliay, A. Jerome and I. Vickridge
Characterization and optimization of magnetron sputtered Sc/Si multilayers for extreme ultraviolet optics
Applied Physics A 88, 719-725 (2007)

K. Le Guen, H. Maury, J.-M. André, P. Jonnard, A. Hardouin, **F. Delmotte**, and M.-F. Ravet-Krill
X-ray spectroscopic application of Cr/Sc periodic multilayers
Appl. Phys. Lett. 91, 234104 (2007)

A.S. Morlens, R. Lopez-Martens, O. Boyko, P. Zeitoun, P. Balcou, K. Varju, E. Gustafsson, T.Remetter, A. L'Huiller, S. Kazamias, J. Gautier, **F. Delmotte**, M.F. Ravet
Design and characterization of extreme ultraviolet broadband mirros for attosecond science
Optics Letters, Vol. 31, Issue 10, pp. 1558-1560 (2006)

H. Maury, P. Jonnard, J.-M. André, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, **F. Delmotte**, M.-F. Ravet, A. Jérome and P. Holliger
Non-destructive X-ray study of the interphases in Mo/Si and Mo/B4C/Si/B4C multilayers
Thin Solid Films, Volume 514, 278-286 (2006)

F. Bridou, J. Gautier, **F. Delmotte**, M.-F. Ravet, O. Durand and M. Modreanu
Thin multilayers characterization by grazing X-ray reflectometry and use of Fourier transform
Applied Surface Science 253, 12-16 (2006)

M. Fajardo et al.
Second generation X-ray lasers
J. Quantitative Spectroscopy and radiative Transfer, 99 142-152 (2006)

J. Gautier, **F. Delmotte**, M. Rouillay, F. Bridou, M. F. Ravet, and A. Jérôme
Study of normal incidence three component multilayer mirrors in the range 20 nm - 40 nm
Applied Optics, 44, 384-390 (2005).

J.-M. André, P. Jonnard, C. Michaelsen, J. Wiesmann, F. Bridou, M.-F. Ravet, A. Jérome, **F. Delmotte**, E. O. Filatova
La/B4C small period multilayer interferential mirror for the analysis of boron
X-Ray Spectrometry 34, 179 - 257 (2005)

A-S. Morlens, P. Zeitoun, L. Vanbostal, P. Mercere, G. Faivre, S. Hubert, P. Troussel, C. Remond, R. Marmoret, **F. Delmotte**, M-F. Ravet and M. Rouillay
Study of XUV beam splitter flatness for use on a Michelson interferometer
Laser and Particle Beams 22, 279-284 (2004)

P. Zeitoun et al.
Recent developments in XUV optics and XUV diagnostics
Applied-Physics-B-Lasers-and-Optics. B78, 983-8 (2004)

M. P. Besland, M. Lapeyrade, **F. Delmotte**, G. Hollinger
Interpretation of stress variation in silicon nitride films deposited by electron cyclotron resonance plasma
J. Vac. Sci. Technol. A 22(5), 1962-1970 (2004)

Smith-RF; Dunn-J; Hunter-JR; Nilsen-J; Hubert-S; Jacquemot-S; Remond-C; Marmoret-R; Fajardo-M; Zeitoun-P; Vanbostal-L; Lewis-CLS; Ravet-MF; **Delmotte-F**
Longitudinal coherence measurements of a transient collisional x-ray laser
Opt. Lett. 28, 2261-2263 (2003)

Delmotte-F; Ravet-MF; Bridou-F; Varniere-F; Zeitoun-P; Hubert-S; Vanbostal-L; Soullie-G
X-ray-ultraviolet beam splitters for the Michelson interferometer,
APPLIED-OPTICS 41, 5905-5912 (2002)

Andre-JM; Benbalagh-R; Barchewitz-R; Ravet-MF; Raynal-A; **Delmotte-F**; Bridou-F; Julie-G; Bosseboeuf-A; Laval-R; Soullie-G; Remond-C; Fialin-M
X-ray multilayer monochromator with enhanced performance
APPLIED-OPTICS 41, 239-244 (2002)

Andre-JM; Benbalagh-R; Barchewitz-R; Ravet-MF; Raynal-A; **Delmotte-F**; Bridou-F; Julie-G; Bosseboeuf-A; Laval-R; Soullie-G; Remond-C; Fialin-M
Soft x-ray multilayer monochromator with improved resolution and low specular background
X-RAY-SPECTROMETRY. 30, 212-215 (2001)

Benbalagh,-R.; Andre,-J.--M.; Barchewitz,-R.; Ravet,-M.--F.; Raynal,-A.; **Delmotte,-F**.; Bridou,-F.; Julie,-G.; Bosseboeuf,-A.; Laval,-R.; Troussel,-P.
Fabrication and characterization of a Mo/Si multilayer monochromator with a narrow spectral bandwidth in the XUV domain,
Nuclear-Instruments-&-Methods-in-Physics-Research,-Section-A 458, 650-5 (2001)

Actes de Conférences internationales

R. Mercier Ythier, X. Bozec, R. Geyl, A. Rinchet, Christophe Hecquet, Marie-Françoise Ravet-Krill, **Franck Delmotte**, Benoît Sassolas, Raffaele Flaminio, Jean-Marie Mackowski, Christophe Michel, Jean-Luc Montorio, Nazario Morgado, Laurent Pinard, and Elodie Roméo
EUV near normal incidence collector development at SAGEM
Proc. SPIE 6921, 692135 (2008)

Christophe Hecquet, Marie-Françoise Ravet-Krill, **Franck Delmotte**, Arnaud Jérôme, Aurélie Hardouin, Françoise Bridou, Françoise Varnière, Marc Roulliay, Frédéric Bourcier, Jean-Michel Desmarres, Vincent Costes, Jacques Berthon, André Rinchet, and Roland Geyl
Design, conception, and metrology of EUV mirrors for aggressive environments
Proc. SPIE 6586, 65860X (2007)

J. Gautier, A. S. Morlens, P. Zeitoun, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, J. P. Goddet, S. Sebban, **F. Delmotte**, M. F. Ravet, and F. Bridou
XUV optics for attosecond applications
Proc. SPIE 6705, 67050C (2007)

H. Maury, P. Jonnard, J.-M. André, J. Gautier, F. Bridou, **F. Delmotte** and M.-F. Ravet
Interface characteristics of Mo/Si and B4C/Mo/Si multilayers using non-destructive X-ray techniques
Surface Science, Volume 601, 2315-2322 (2007)

Frédéric Auchère, Marie-Françoise Ravet-Krill, John D. Moses, Frédéric Rouesnel, Jean-Pierre Moalic, Denis Barbet, Christophe Hecquet, Arnaud Jérome, Raymond Mercier, Jean-Christophe Leclec'h, **Franck Delmotte**, and Jeffrey S. Newmark
HECOR: a HElium CORonagraphy aboard the Herschel sounding rocket
Proc. SPIE 6689, 66890A (2007)

Jean-Marc Defise, Jean-Philippe Halain, David Berghmans, François Denis, Emmanuel Mazy, Tanguy Thibert, Jean-Hervé Lecat, Pierre Rochus, Bogdan Nicula, Anik De Groof, Jean-François Hochedez, Udo Schühle, Marie-Françoise Ravet, and **Frank Delmotte**
SWAP: a novel EUV telescope for space weather
Proc. SPIE 6689, 66890S (2007)

H. Maury, P. Holliger, B. Farès, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, **F. Delmotte**, M.-F. Ravet, J.-M. André, P. Jonnard
Analysis of a B4C/Mo/Si multilayer interferential mirror by SIMS: influence of the sputtering ion
Surface and Interface Analysis 38, 781-783 (2006)

H. Maury, J.-M. André, J. Gautier, F. Bridou**, F. Delmotte**, M.-F. Ravet, P. Holliger, P. Jonnard
Physico-chemical study of the interfaces of Mo/Si multilayer interferential mirrors: correlation with the optical properties
Surface and Interface Analysis 38, 744 – 747 (2006)

F. Delmotte, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, M. F. Ravet, A. Jérome
B4C/Mo/Si multilayers for 20-40 nm wavelengths: application to broadband mirrors
Proc. SPIE 5963, 59631V (2005)

J. Gautier, **F. Delmotte**, M. Roulliay, M. F. Ravet, F. Bridou, A. Jerome, A. Giglia, S. Nannarone
Performances and stability of Sc/Si multilayers with barrier layers for wavelengths around 46 nm
Proceeding SPIE 5963, 270-277 (2005)

A. S. Morlens, M. F. Ravet, V. Laude, R. Lopez-Martens, M. Roulliay, A. Jérome, **F. Delmotte**, F. Bridou, S. Kazamias, P. Balcou, P. Zeitoun
X-UV chirped mirror fabrication for phase control of attosecond pulses
Proc. SPIE 5963, 59630W (2005).

Wulser,-J.-P.et al.
The STEREO-SECCHI extreme ultraviolet imager
Proceedings-of-the-SPIE; 5171, 111-22(2004)

Rochus,-P et al.
MAGRITTE: an instrument suite for the solar Atmospheric Imaging Assembly (AIA) aboard the Solar Dynamics Observatory
Proceedings-of-the-SPIE 5171, 53-64 (2004)

Ravet,-M.-F.; Bridou,-F.; Xueyan-Zhang-Song; Jerome,-A.; **Delmotte,-F**.; Mercier,-R.; Bougnet,-M.; Bouyries,-P.; Delaboudiniere,-J.--P.
Ion beam deposited Mo/Si multilayers for EUV imaging applications in Astrophysics
Proceedings-of-the-SPIE 5250, 99-108 (2004)

Mazy,-E.; Defise,-J.--M.; Halain,-J.--P.; Rochus,-P.; Rossi,-L.; Mercier,-R.; Ravet,-M-F.; **Delmotte-F**.; Idir-M.
MAGRITTE optomechanical design and mirror manufacturing"
Proceedings-of-the-SPIE 5249, 182-90. (2004)

Actes de Conférences nationales avec comité de lecture

J. Gautier, **F. Delmotte**, F. Bridou, M. Rouillay, F. Varniere, S. de Rossi et A. Jerome
Optiques multicouches EUV
J. Phys. IV France 138, 237-244 (2006)

S. de Rossi, D. Joyeux, **F. Delmotte** et B. Ea-Kim
Métrologie d'indice par interférométrie EUV
J. Phys. IV France 138, 231-236(2006)

Ch. Hecquet, M. Roulliay, **F. Delmotte**, M.F. Ravet-Krill, A. Hardouin et M. Idir
Réflectomètre à large spectre EUV pour la métrologie d'optiques
J. Phys. IV France 138, 259-264 (2006)

F. Delmotte, J. Gautier, M.F. Ravet, F. Bridou et A. Jerome
Optiques multicouches pour l'extrême UV
J. Phys. IV France 127, 69-75 (2005)

P. Jonnard, J.-M. André, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, **F. Delmotte** et M.-F. Ravet
Étude d'un empilement multicouche périodique Mo/Si par spectroscopie d'émission X et par réflectométrie X
J. Phys. IV France 118, 231-236 (2004)

Delmotte-F; Ravet-MF; Bridou-F; Song-X; Jerome-A; Boujdayane-S; Hubert-S; Zeitoun-P; Idir-M; Troussel-P
Deposition and calibration of multilayers for X-ray-UV optics in the 10-30 nm range
JOURNAL-DE-PHYSIQUE-IV. 108, 255-258 (2003)

Bridou-F; Ravet-MF; **Delmotte-F**; Song-X; Jerome-A
Significance of multlayers consisting of light materials for X-ray-UV optics around 40 eV
JOURNAL-DE-PHYSIQUE-IV. 108, 251-253 (2003)

Benbalagh-R; Andre-JM; Barchewitz-R; Ravet-MF; **Delmotte-F**; Bridou-F; Julie-G; Bosseboeuf-A; Laval-R; Remond-C; Soullie-G; Troussel-P; Fialin-M
X-ray-UV multilayer monochromator with narrow bandwidth and low specular background
JOURNAL-DE-PHYSIQUE-IV. 12, 293-298 (2002)

Hubert-S; Zeitoun-P; Bechir-E; Vanbostal-L; Carillon-A; **Delmotte-F**; Fourcade-P; Idir-M; Le-Pape-S; Ravet-MF; Ros-D; Jamelot-G
Development of a X-UV Michelson interferometer for probing laser produced plasmas with a X-ray laser
JOURNAL-DE-PHYSIQUE-IV. 11, 515-518 (2001)

Conférences invitées

F. Delmotte, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, M. F. Ravet, A. Jerome
"Experimental study of high reflectance multilayers for 30-35 nm wavelengths", 7th International conference on the physics of X-Ray multilayers structures, 7-11 mars 2004, Sapporo, Japan.

F. Delmotte, J. Gautier, M-F. Ravet, F. Bridou, A. Jerome
« Optiques multicouches pour l'extrême UV », 7ème colloque sur les sources cohérentes et incohérentes UV, VUV et X applications et développements récents (St-Etienne, juin 2004).

Autres conférences internationales

Christophe Hecquet, **Franck Delmotte**, Marie-Françoise Ravet-Krill, Arnaud Jerome, Françoise Bridou, Frédéric Auchere, Frédéric Bourcier, Jean-Michel Desmarres, Angelo Giglia, Stefano Nanaronne, Françoise Varniere, « Two channel EUV mirror for solar missions: design, performances and stability », (poster) The 9th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, February 3-7, 2008, Big Sky Resort, Montana

Franck Delmotte, Aurélie Hardouin, Marie-Françoise Ravet, Françoise Bridou, Arnaud Jerome, Françoise Varniere, Sébastien Hedacq, Benoist Albertin, "Improved spectral purity of EUV multilayer mirrors with optimized SiO2 top layer", (oral) The 9th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, February 3-7, 2008, Big Sky Resort, Montana

A. Hardouin, **F. Delmotte**, M-F. Ravet, A. Jerome, C. Montcalm, R. Siebrecht, M. Roulliay, And E. Gullikson, "Development of Mo/Si multilayers mirrors for EUV Lithography", (poster) The 8th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, March 12-16, 2006, Sapporo, Japan

Franck Delmotte, Julien Gautier, Marie-Françoise Ravet, Sébastien De Rossi, Françoise Bridou, Arnaud Jerome, "Development of multilayer mirrors for the 20–50 nm wavelength region at LCFIO", (oral) The 8th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, March 12-16, 2006, Sapporo, Japan

M.F. Ravet, A. Jerome, F. Bridou , **F. Delmotte**, J.M. Defise, J.H. Lecat, E. Mazy, L. Rossi, T. Thibert, M. Roulliay, "Multilayer deposition and calibration for SWAP EUV off-axis telescope", (oral) The 8th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, March 12-16, 2006, Sapporo, Japan

François Polack, Bruno Lagarde, Mourad Idir, Audrey Liard Cloup, Erick Jourdain, Marc Roulliay, **Franck Delmotte**, Julien Gautier, Marie-Françoise Ravet-Kril "Alternate Multilayer Gratings with Enhanced Diffraction Efficiency in the 500-5000 eV Energy Domain" SRI 2006

M. F. Ravet, F. Bridou, X. Zhang-Song, A. Jerome, **F. Delmotte**, R. Mercier, M. Bougnet, P. Bouyries and J. P. Delaboudinière, "Multilayer coatings deposited on the STEREO-SECCHI extreme ultraviolet imager", (oral) 7th International conference on the physics of X-Ray multilayers structures, 7-11 mars 2004, Sapporo, Japan.

F. Delmotte, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, M. F. Ravet, A. Jerome, X. Zhang-Song, M. Bougnet, J. P. Delaboudinière, "Scandium silicium multilayers with nitride barrier layers", (poster) 7th International conference on the physics of X-Ray multilayers structures, 7-11 mars 2004, Sapporo, Japan.

J. Gautier, **F. Delmotte**, M. Roulliay, F. Bridou, M. F. Ravet, A. Jerome, M. Philippe, S. Dobosz, P. Monod, B. Carré, "Design of selective multilayers for high harmonic generation at 32 nm", (poster) 7th International conference on the physics of X-Ray multilayers structures, 7-11 mars 2004, Sapporo, Japan.

M. F. Ravet, F. Bridou, X. Zhang-Song, A. Jerome, **F. Delmotte**, R. Mercier, M. Bougnet, P. Bouyries and J. P. Delaboudinière,
"Multilayer coatings deposited on the STEREO-SECCHI extreme ultraviolet imager", (oral) 7th International conference on the physics of X-Ray multilayers structures, 7-11 mars 2004, Sapporo, Japan.

A. S. Morlens, P. Zeitoun, L. Vanbostal, **F. Delmotte**, M. F. Ravet, F. Bridou, M. Roulliay, J. Gautier, P. Troussel, C. Remond, R. Marmoret,
"Experimental study of X-UV beamsplitters for Michelson interferometry", (poster) 7th International conference on the physics of X-Ray multilayers structures, 7-11 mars 2004, Sapporo, Japan.

F. Delmotte et al.
Experimental study of X-UV beamsplitters for Michelson interferometry (Poster), The 6th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, March 3-7, 2002 Chamonix Mont-Blanc, France

F. Delmotte et al.
Development and calibration of beamsplitters for use on interferometry at 13.9 nm (Oral), The 5th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, March 5-9, 2000 Chamonix Mont-Blanc, France

Annexe D : Principales publications

Delmotte-F; Ravet-MF; Bridou-F; Varniere-F; Zeitoun-P; Hubert-S; Vanbostal-L; Soullie-G
X-ray-ultraviolet beam splitters for the Michelson interferometer,
Applied Optics 41, 5905-5912 (2002)

J. Gautier, F. Delmotte, M. Rouillay, F. Bridou, M. F. Ravet, and A. Jérôme
Study of normal incidence three component multilayer mirrors in the range 20 nm - 40 nm
Applied Optics, 44, 384-390 (2005).

J. Gautier, F. Delmotte, F. Bridou, M.F. Ravet, F. Varniere, M. Roulliay, A. Jerome and I. Vickridge
Characterization and optimization of magnetron sputtered Sc/Si multilayers for extreme ultraviolet optics
Applied Physics A 88, 719-725 (2007)

Aurélie Hardouin, Franck Delmotte, Marie Françoise Ravet, Françoise Bridou, Arnaud Jerome, Françoise Varnière, Claude Montcalm, Sébastien Hedacq, Eric Gullikson, Pascal Aubert
Development of Cr/Sc multilayer mirrors for the nitrogen Kα-emission line
J. Vac. Sci. Technol. A 26 (2008)

C. Hecquet, F. Delmotte, M.F. Ravet-Krill, S. de Rossi, A. Jérome, F. Bridou, F. Varnière, E. Meltchakov, F. Auchère, A. Giglia, N. Mahne, S. Nanaronne
Design and performance of two-channel EUV multilayer mirrors with enhanced spectral selectivity
Appl. Phys. A 95, 401 (2009)

E. Meltchakov, C. Hecquet, M. Roulliay, S. De Rossi, Y. Menesguen, A. Jérome, F. Bridou, F. Varniere, M.-F. Ravet-Krill, F. Delmotte
Development of Al-based multilayer optics for EUV
Appl. Phys. A, DOI 10.1007/s00339-009-5445-2, published online 15 October 2009.

Y. Ménesguen, S. de Rossi, E. Meltchakov and F. Delmotte
Aperiodic multilayer mirrors for efficient broadband reflection in the extreme ultraviolet
Appl. Phys. A, DOI 10.1007/s00339-009-5400-2, published online 19 September 2009.

X-ray–ultraviolet beam splitters for the Michelson interferometer

Franck Delmotte, Marie-Françoise Ravet, Françoise Bridou, Françoise Varnière, Philippe Zeitoun, Sébastien Hubert, Laurent Vanbostal, and Gérard Soullie

With the aim of realizing a Michelson interferometer working at 13.9 nm, we have developed a symmetrical beam splitter with multilayers deposited on the front and back sides of a silicon nitride membrane. On the basis of the experimental optical properties of the membrane, simulations have been performed to define the multilayer structure that provides the highest reflectivity–transmission product. Optimized Mo–Si multilayers have been successfully deposited on both sides of the membrane by use of the ion-beam sputtering technique, with a thickness-period reproducibility of 0.1 nm. Measurements by means of synchrotron radiation at 13.9 nm and at an angle of 45° provide a reflectivity of 14.2% and a transmission of 15.2% for a 60% *s*-polarized light, close to the simulated values. Such a beam splitter has been used for x-ray laser Michelson interferometry at 13.9 nm. The first interferogram is discussed.
© 2002 Optical Society of America
OCIS codes: 230.1360, 230.4170, 310.1860, 310.6860, 340.0340, 340.7450.

1. Introduction

Since their first realization around 15 years ago, x-ray transmissive optics permit new investigations in x-ray optics applications. Now x-ray optics technology has evolved to the point at which it is possible to extend the applications field to x-ray–ultraviolet (X–UV) interferometry with the objective to characterize optics or dense plasmas. Indeed, in the study of laser-produced plasmas, optical interferometry has played a key role in absolute measurements of electron densities in a wide range of plasmas.[1,2] But the maximum electron density accessible and the size of the probed plasmas are severely restricted by absorption and refraction of the probe beam. For these reasons there has existed a need to develop interferometers in the soft-x-ray range in which these effects can be mitigated. A grating or a purely reflective x-ray interferometric system, such as the Fresnel bimirror setup, has been discussed in the literature and has been used successfully.[3,4] However, either technique lacks some of the advantages of standard interferometer geometries. In 1995 Da Silva and collaborators developed an amplitude-division x-ray Mach–Zehnder, successfully used to probe a dense plasma at 15.5 nm.[5] This experiment revealed internal residual stresses in X–UV beam splitters,[6] which induce fringe-pattern deformations that can hamper the interpretation of plasmas' interferograms. So to reduce the fringe-pattern deformation, we chose to develop an X–UV Michelson interferometer consisting of only one beam splitter with its own internal stress operating at a 45° incidence angle at 13.9 nm.

Silicon nitride membranes have been widely used as a semitransparent substrate for x-ray transmissive optics in the wavelength range of 13–16 nm because of their relatively high transmission.[5,7,8] Indeed, to realize a beam splitter in the soft-x-ray range, one can either deposit a multilayer on a membrane or deposit a multilayer on a silicon nitride layer and then etch the substrate's back side. In either case, the beam splitter can provide a good reflectivity from the coated side and a good transmission. Unfortunately, the reflectivity from the uncoated side is

F. Delmotte (franck.delmotte@iota.u-psud.fr), M.-F. Ravet, F. Bridou, and F. Varniere are with Groupe de Physique des Films Minces, Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, Centre National de la Recherche Scientifique, Unité Mixte de Recherche 8501, Centre Scientifique Bâtiment 503, 91403 Orsay CEDEX, France. P. Zeitoun, S. Hubert, and L. Vanbostal are with Laboratoire de Spectroscopie Atomique et Ionique, Centre National de la Recherche Scientifique, Unité Mixte de Recherche 8624, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France. G. Soullie is with Commissariat a l'Energie Atomique, BP 12, 91680, Bruyères-le-Châtel, France.

Received 2 January 2002; revised manuscript received 25 June 2002.
0003-6935/02/285905-08$15.00/0
© 2002 Optical Society of America

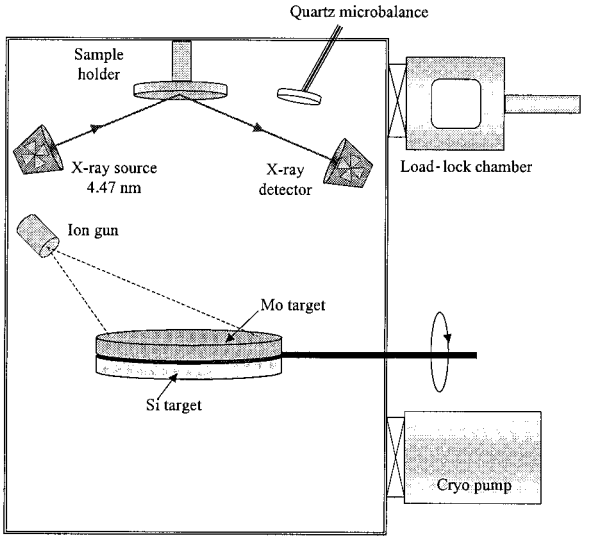


Fig. 1. Schematic diagram of the ultrahigh-vacuum deposition system.

low (typically less than 5%) owing to the absorption in the silicon nitride membrane before and after the reflection on the multilayer coating. Consequently, this kind of beam splitter is not suited for the Michelson interferometer, in which good reflectivities from both sides of the beam splitter are required to prevent contrast losses between the two arms of the interferometer. One solution to this problem is to use free-standing multilayers as those described by Haga *et al.*[9] However, the development of such a beam splitter is rather complex and involves many technological steps, leading to a high cost.

As an alternative, we propose a symmetrical beam splitter with multilayers deposited on the front and back sides of a silicon nitride membrane. In this paper we describe the simulation, development, and wavelength calibration of this new kind of beam splitter to be used in an X–UV Michelson interferometer.

2. Experimental Technique

Multilayers are deposited by an ion-beam sputtering technique, in a ultrahigh-vacuum chamber cryopumped to a base pressure of less than 10^{-6} Pa and equipped with a load-lock chamber (Fig. 1). The 5-in.-diameter (1 in. = 2.54 cm) Mo and Si targets are successively ion beam sputtered by rotation of the target-holder system. We use a 3-cm Ion Tech ion-beam source with a mixture of 10% H_2 in Ar gas. Throughout the study, the ion-beam current and ion energy on the target are fixed at 30 mA and 650 eV, respectively. The samples are mounted on top of the chamber on a 2-in.-diameter sample holder. Deposited thicknesses are controlled by means of a quartz microbalance and an *in situ* x-ray reflectometer working at 4.47 nm (Cu Kα). The combination of these two techniques provides good accuracy on the period thickness of the multilayer.

The specular x-ray reflectivity was measured *ex situ* as a function of the incident angle with a reflectometer working with the Cu Kα emission (λ = 0.15405 nm) delivered by a classical x-ray tube, equipped with a graphite rear monochromator and 40-μm entrance and reception slits. The angular resolution of the reflectometer is better than 0.001 deg. The reflectivity curve is obtained by our varying the grazing angle while tracking the reflected beam. This kind of curve allows the determination of the parameters of the stack such as the complex indices, the thickness of each layer, and the interfacial roughnesses. After computation of theoretical reflectivities starting with given parameters, the experimental reflectivity curve can be fitted by a trial-and-error method.[10]

An Akashi Topcon transmission electron microscope operated at 200 kV with a LaB_6 filament was used for transmission electron microscopy (TEM) studies. Cross-sectional specimens for TEM were mechanically polished to 80 μm and then dimpled in the center to 20 μm. This was followed by further thinning to electron transparency by Ar^+-ion milling at 6 kV in a cooling stage.

Reflectivity and transmission measurements in the energy range of 65–150 eV have been performed at the Super ACO synchrotron facility (Orsay, France) on the SA23 beamline. The line is equipped with a 750-lines/mm toroidal grating monochromator and a soft-x-ray reflectometer with an International Radiation Detectors, Inc. AXUV100 silicon diode as detector. The monochromator resolution is approximately 0.7 eV at 100 eV and the degree of *s* polarization is approximately 60%.

3. Results and Discussion

A. Preliminary Study: Membrane Charaterization

In this study we use commercially available silicon nitride membranes provided by Silson Ltd. The silicon frame size is 10 mm $\times$ 10 mm, and the membrane size is 5 mm $\times$ 5 mm. The Si_3N_4 thickness is in the range of 80–100 nm.

Silicon nitride membranes have been first characterized by x-ray grazing-angle reflectometry to determine the thickness and the optical constant of Si_3N_4. The experimental data and the fit of these data are shown on Fig. 2. The fit gives a thickness of 88.5 nm and an index δ of 9.6×10^{-6}, i.e., approprimately 85% of the tabulated value for bulk Si_3N_4.

Figure 3 shows the transmission of the Si_3N_4 membrane measured at 45° in the 65–150-eV energy range. The high transmission at 89.2 eV (more than 35%) confirms that these membranes can be used as support for beam splitters. We have also plotted on Fig. 3 the simulated transmission of a single film of Si_3N_4, with a 88.5-nm thickness and a density of 2.92 g/cm^3 (85% of the bulk Si_3N_4 density). We note an energy shift in the Si absorption edge between simulation and experimental data. This shift is approximately 3.4 eV and is interpreted as a consequence of the nature of chemical bonding in Si_3N_4, which is not taken into account in the simulation. Apart from this shift, the simulated curve is in good agreement

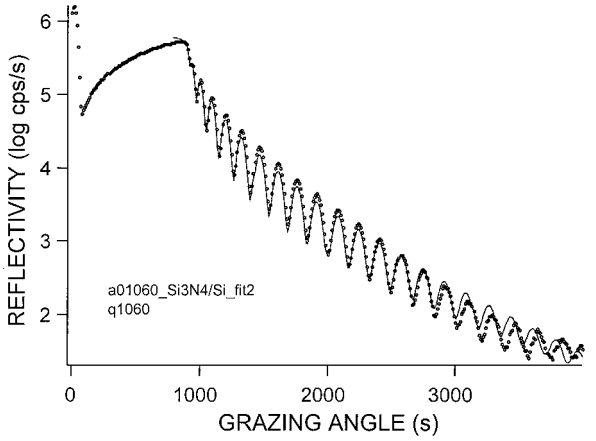


Fig. 2. X-ray grazing-angle reflectometry curve measured at 0.154 nm on a silicon nitride membrane (circles) and fitted curve (solid curve) obtained with a thickness of 88.5 nm and an index δ of 9.6×10^{-6} for the silicon nitride. cps, counts per second.

with the experimental data, indicating that the parameters chosen for the simulation are relevant. So we have decided to use this membrane model for the beam splitter simulations.

B. Optimization of the Beam Splitter Structure by Way of Simulation

In the wavelength range of interest for the x-ray laser interferometry applications (around 13.9 nm), Mo and Si are common materials that present a good optical contrast, so we choose these materials to perform the multilayer coating.

As explained in the introduction of this paper, we have developed a new kind of beam-splitter structure with multilayers deposited on the front and back sides of the silicon nitride membrane. The beam-splitter structure is shown in Fig. 4; we call it a "both-sides-coated Si_3N_4 membrane." Owing to the symmetry of this beam-splitter structure, the reflectivity from the back side should be the same as the

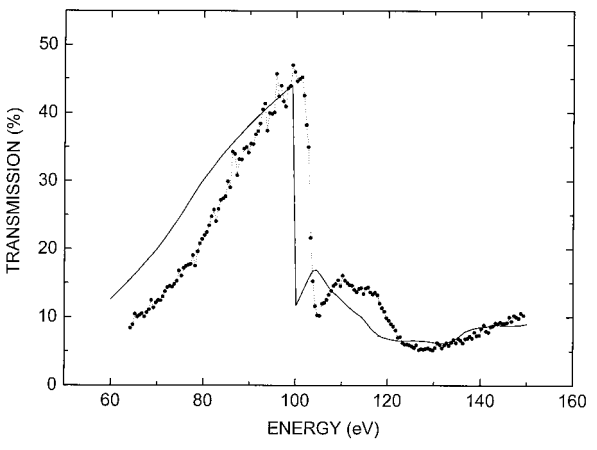


Fig. 3. Transmission of the Si_3N_4 membrane at 45° in the 65–150-eV energy range: Circles represent the experimental values, and the solid curve is the simulated curve for a silicon nitride film with a 88.5-nm thickness and a density of 2.92 g/cm^3.

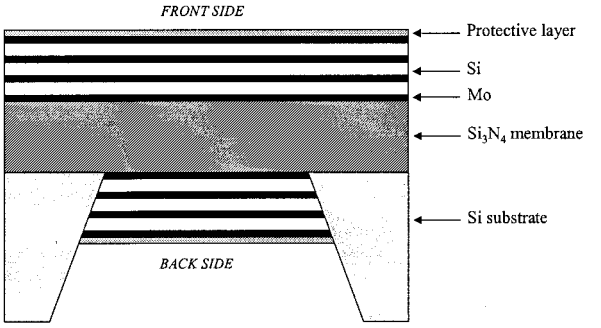


Fig. 4. Schematic diagram of a both-sides-coated silicon nitride membrane.

reflectivity from the front side. We have simulated this kind of beam splitter to optimize the relative thicknesses of Mo in the period ($\gamma = th_{Mo}/th_{Si} + th_{Mo}$) and the number of periods on each side (N_P). All simulations were made in the case of s-polarized light under an incidence angle of 45° fixed by the interferometer design. In fact, as the angle of incidence is the Brewster angle, the reflectivity for p polarization is very low (typically, 100 times lower than for s polarization). So, when mounted in a Michelson interferometer, the beam splitter will be effective only for the s component of the x-ray source.

We have calculated the variation of the reflectivity–transmission product ($R \times T$ product) as a function of the relative thickness of Mo in the period with optimized N_P for each thickness and with a period thickness of 10.2 nm. Results are optimized with γ values in the range of 0.2–0.3. Figure 5 shows the variation of the $R \times T$ product as a function of the number of Mo–Si periods on each side with γ fixed at 0.25: Approximately 3% of the $R \times T$ product can be obtained with N_P equal to 4 or 5.

On Fig. 6 we compare the reflectivities of a both-sides-coated (curve a) and a one-side-coated (curves b and c) Si_3N_4 membrane. In this latter case, we have calculated the reflectivity from the coated side (curve b) and the reflectivity from the uncoated side (curve c). For a both-sides-coated Si_3N_4 membrane, the re-

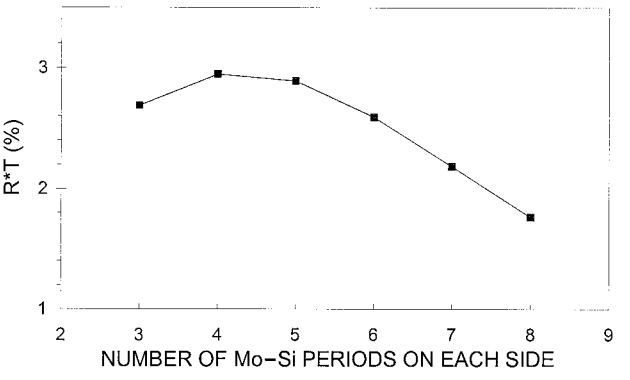


Fig. 5. Variation of the reflectivity–transmission product as a function of the number of Mo–Si periods on each side of the membrane. The relative thickness of Mo in the period (γ) was fixed at 0.25.

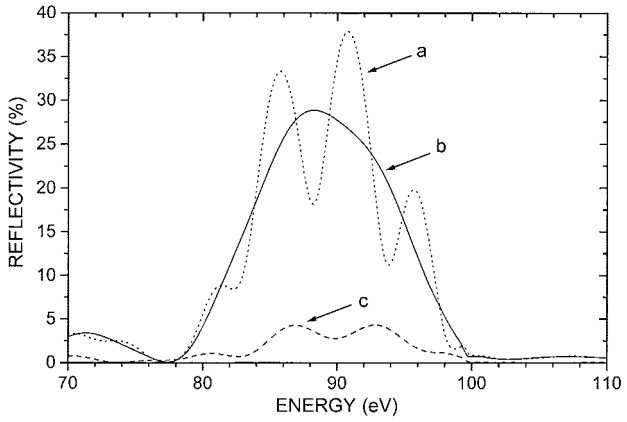


Fig. 6. Simulated reflectivities for a both-sides-coated Si_3N_4 membrane (curve a) and for a one-side-coated Si_3N_4 membrane with light coming on the coated side (curve b) or on the uncoated side (curve c).

flectivity from the front and back sides would be the same owing to the symmetry of the beam-splitter structure. The oscillations that appear on the reflectivity spectra a and c are due to the Fabry–Perot effect in the stack (the Si_3N_4 membrane acts as a cavity). We also note that at the energy of interest (89.2 eV for a wavelength of 13.9 nm), the both-sides-coated membrane presents a reflectivity of 25.8%, which is close to the reflectivity from the front side of the one-side-coated membrane (28.4%) without the inconvenience of a very low reflectivity (2.9%) from the back side. Calculations of the $R \times T$ product indicate an enhancement by a factor of 5 on the throughput by use of the both-sides-coated membrane. These results clearly show that the both-sides-coated Si_3N_4 membrane is well suited for Michelson interferometry applications.

C. Fabrication of the Beam Splitter: Multilayer Deposition and Control

Before coating the Si_3N_4 membrane, we have to be sure of the quality and thicknesses of the deposited layers. For this study, we have deposited Mo–Si multilayers with Mo and Si thicknesses deduced from simulations on test samples (silicon or float glass substrates) with N_P equal to 5. These samples were first analyzed by grazing x-ray reflectometry at 0.154 nm.

Figures 7(a) and 7(b) show the experimental curves and the fitted curves for two float glass substrates coated in the same conditions but not at the same time. The parameters determined by these fits are given in Tables 1 and 2, respectively. We note that the complex indices of Mo and Si layers at 0.154 nm are close to the tabulated ones[11]:

$$\delta_{Si} = 7.6 \times 10^{-6}, \qquad \delta_{Mo} = 28.6 \times 10^{-6},$$

$$\beta_{Si} = 0.17 \times 10^{-6}, \qquad \beta_{Mo} = 1.87 \times 10^{-6}.$$

These results suggest that deposited Mo and Si materials are pure and dense. These fits also indicate

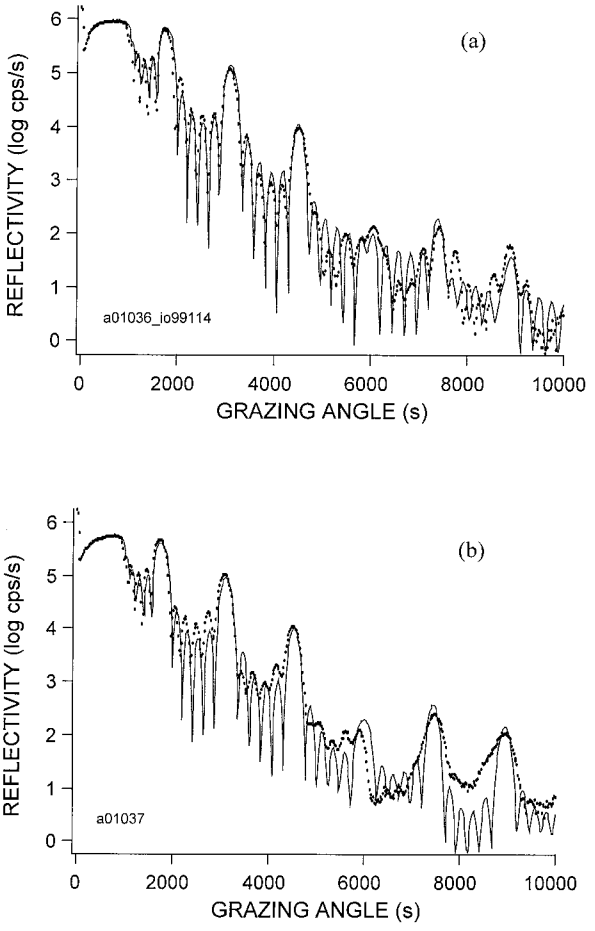


Fig. 7. X-ray grazing-angle reflectometry curves: Experimental data measured at 0.154 nm on multilayer-coated float glass sample (circles) and fitted curve (solid curve). (a) and (b) correspond to two different samples deposited in the same condition but not at the same time.

that the interfacial roughness estimated by x-ray reflectometry is approximately 0.7 nm.

TEM and high-resolution TEM (HRTEM) measurements are in good agreement with these results. The photographs shown in Figs. 8(a) and 8(b) reveal dense and continuous Mo and Si layers with well-defined interfacial regions. The interface between the first Mo layer and the Si substrate is rather rough probably owing to the oxide layer of the silicon substrate that had not been removed before deposition. The interfaces of the additional Mo layers are sharper and clearly show the effect of smoothening of the interfaces after only one period deposited. Moreover, a high-resolution TEM analysis indicates that the Si and Mo layers are amorphous [Fig. 8(b)]. A polycrystalline structure of the Mo layers has often been reported in the literature in the case of magnetron-sputtering deposition.[7,12–15] However, the structure of Mo layers has been found to depend on the deposition method used, and amorphous Mo layers have been deposited by e-beam evaporation and ion-beam sputtering.[12]

One key for the success of the beam splitter is the

Table 1. Results of the Fit of an X-Ray Grazing-Angle Reflectometry Curve Measured on a Multilayer-Coated Float Glass Sample[a]

Material	Thickness (nm)	Roughness (nm)	Index δ	Absorption β
Substrate, float glass	∞	0.4	7.7×10^{-6}	0.13×10^{-6}
Layer 1, Mo	2.73	0.7	26×10^{-6}	1.9×10^{-6}
Layer 2, Si	8.1	0.6	7.5×10^{-6}	0.13×10^{-6}
Layer 3, Mo	2.73	0.7	26×10^{-6}	1.9×10^{-6}
⋮				
Layer 12, Si	3	0.3	7.5×10^{-6}	0.13×10^{-6}

[a]See Fig. 7(a).

reproductibility of the multilayer deposition on both sides of the membrane. The association of *in situ* reflectometry and *in situ* quartz microbalance allows us to control the thickness of the period within 0.1 nm between two depositions as illustrated in Figs. 7(a) and 7(b) and in Tables 1 and 2.

It is also essential to minimize the tensile stress in the beam splitter after the multilayer deposition (approximately 40 to 50 MPa).[9,16] Ion-beam-deposited multilayers are known to be highly stressed in a compressive mode: The stress of a Mo–Si multilayer similar to those used in the beam splitter (with N_P equal to 5) has been calculated from the measurements of a Si substrate curvature before and after multilayer deposition by use of Stoney's formula and is approximately −810 MPa. So we choose a highly tensile Si_3N_4 membrane: By varying the period thickness and number of period N_P, we can adjust the total stress value so that it remains in tensile mode. In the case of N_P equal to 5, we found that beam splitters wrinkle when the multilayer coating has a period thickness greater than 10.7 nm, whereas they remain flat when the period thickness is approximately 10 nm. In the case of N_P equal to 4, the beam splitters remain flat whatever the period thickness is, in the range of 10–10.7 nm.

D. Test and Calibration of the Beam Splitter

We have first measured grazing x-ray reflectivity of a both-sides-coated membrane at 0.154 nm to verify that the substrate nature (i.e., the silicon nitride membrane) does not significantly modify the multilayer quality. The measured data are shown on Fig. 9. The fit of these data is rather complex, so it has been made in two steps. First, we have determined the complex indices of materials by fitting the data coming from measurements on float glass witness samples that were coated at the same time as the beam splitter (one for each side). Then we have fixed the value of the complex indices, and we have fitted the data measured on the beam splitter by varying thicknesses and interfacial roughnesses. The fitted curve is shown on Fig. 9, and the results of this fit are given in Table 3. This result confirms that we have deposited very similar multilayers on both sides (period thickness of 9.9 and 10 nm) and indicates that the interfacial roughness in the multilayers deposited on the membrane is not higher than those measured on float glass samples (Tables 1 and 2).

Beam splitters with N_P equal to 4 and 5 have also been tested on a synchrotron radiation source around the wavelength 13.9 nm (89.2 eV in energy). All transmission and reflectivity measurements were made with an incidence angle of 45°. On Fig. 10(a) the transmission of a beam splitter with a N_P of 4 and a period thickness of 10.7 nm is plotted as a function of x-ray energy. We note that two absorption edges appear on this curve: The first at approximately 100 eV is related to the absorption edge of silicon in the deposited layers, and the second at approximately 104 eV is related to the absorption edge of silicon in the silicon nitride layer, as reported on Fig. 3. The transmission value measured at 89 eV is 16.8% in this case. The reflectivity curve measured on the same beam splitter is plotted on Fig. 10(b). As predicted by simulations, oscillations appear because of the Fabry–Perot effect in the Si_3N_4 membrane. At 89 eV the measured reflectivity is 10.5%. These results show that, even with an unoptimized period thickness, this kind of beam splitter provides satisfying transmission and reflectivity.

As expected, the reflectivity of a beam splitter with a N_P of 5 and a period thickness of 10 nm is higher and the transmission is somewhat lower: Measurements at 89 eV give 14.2% for reflectivity and 15.2%

Table 2. Results of the Fit of an X-Ray Grazing-Angle Reflectometry Curve Measured on a Multilayer-Coated Float Glass Sample[b]

Material	Thickness (nm)	Roughness (nm)	Index δ	Absorption β
Substrate, float glass	∞	0.4	7.7×10^{-6}	0.13×10^{-6}
Layer 1, Mo	2.65	0.6	25×10^{-6}	1.9×10^{-6}
Layer 2, Si	8.1	0.35	7.4×10^{-6}	0.13×10^{-6}
Layer 3, Mo	2.65	0.6	25×10^{-6}	1.9×10^{-6}
⋮				
Layer 12, Si	3	0.3	7.4×10^{-6}	0.13×10^{-6}

[b]See Fig. 7(b).

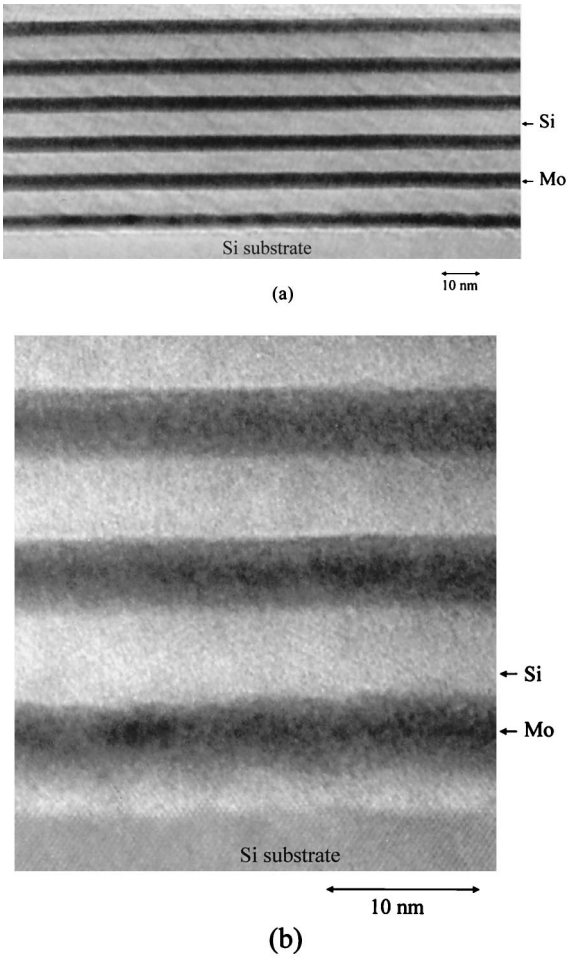


Fig. 8. TEM and high-resolution TEM pictures of a Mo–Si multilayer.

for transmission. From these values, and assuming a degree of s polarization of 60% on the synchrotron beamline that we have used, we can estimate that reflectivity and transmission for s-polarized x rays are, respectively, approximately 23% and 13%, which

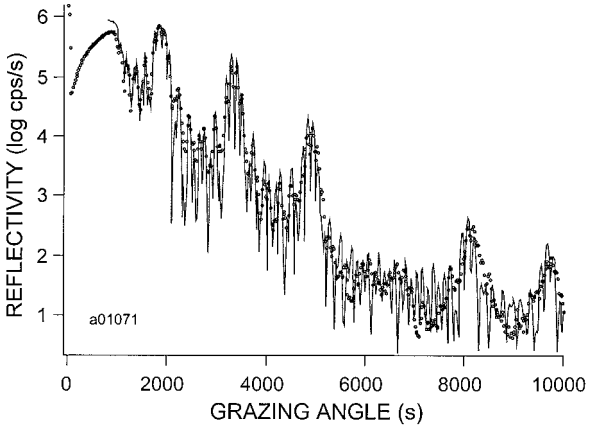


Fig. 9. X-ray grazing-angle reflectivity curves: experimental data measured on a both-sides-coated membrane at 0.154 nm (circles) and fitted curve (solid curve).

means that the $R \times T$ product is approximately 3% for this beam splitter. These values are very close to the predicted ones (see Figs. 5 and 6) and show that the deposition of high-quality multilayers on silicon nitride membrane has been achieved.

Finally, we have also measured the reflectivity of the back side of the beam splitter. On Fig. 11 we compare the reflectivity of the front side of a beam splitter to the reflectivity of the back side of another beam splitter deposited in the same conditions (N_P of 5 and period thickness of 10 nm). Although the period thicknesses are quite the same, a shift appears in the Fabry–Perot oscillations. This shift could be interpreted either as a variation of the silicon nitride membrane thickness between the two beam splitters or as a variation of the relative thickness of Mo (γ) between the two multilayers.

Figure 11 shows that the reflectivity of the back side is higher than the reflectivity of the front side (26% against 20% if we compare the peak value). These features have already been reported by several authors[8,9] and have been related to the difference of roughness of the silicon nitride membrane's front side and back side (the back side's roughness is lower). Preliminary atomic force microscopy analysis have been done on both sides of our beam splitter and clearly show that the front side is much rougher than the back side. Further studies are in progress in order to know the real effect of this roughness on the beam-splitter performances and light polarization.

4. Conclusion

We have calculated and developed a new kind of X–UV beam splitter with symmetrical properties as required for an X–UV Michelson interferometer. Optimized Mo–Si multilayers have been successfully deposited on both sides of a commercially available silicon nitride membrane by use of the ion-beam sputtering technique. The thickness-period reproductibility is 0.1 nm and allows us to deposit similar multilayers on both sides of the membrane. Grazing x-rays reflectometry at 0.154 nm and TEM analysis show that the multilayers are made of dense, continuous, and amorphous Mo and Si layers. The interfacial roughness estimated by x-ray reflectometry is approximately 0.7 nm and seems to be independent of the substrate type (float glass samples or silicon nitride membranes).

Synchrotron radiation measurements at 13.9 nm provide a reflectivity of 14.2% and a transmission of 15.2% for a 60% s-polarized light. From these measurements we can deduce that the $R \times T$ product of the beam splitter is close to the simulated value of 3%. The reflectivity of the back side has been measured to be somewhat higher than that of the front side. This phenomenon seems to be related to the roughness of the beamsplitter's front side, which has been found to be higher than the roughness of the back side, as measured by atomic force microscopy.

Finally, these beam splitters have been used in a Michelson interferometer for an experiment devoted for the first time, to our knowledge, to Fourier spec-

Table 3. Results of the Fit of an X-Ray Grazing-Angle Reflectometry Curve Measured on a Both-Side-Coated Silicon Nitride Membrane[a,b]

Material	Thickness (nm)	Roughness (nm)	Index δ	Absorption β
Layer 24, Si	3	0.48	7.4×10^{-6}	0.13×10^{-6}
⋮				
Layer 15, Mo	2.5	0.45	25×10^{-6}	1.8×10^{-6}
Layer 14, Si	7.4	0.48	7.4×10^{-6}	0.13×10^{-6}
Layer 13, Mo	2.5	0.45	25×10^{-6}	1.8×10^{-6}
Si_3N_4 membrane	88.5	0.18	9.5×10^{-6}	0.25×10^{-6}
Layer 1, Mo	2.5	0.71	26×10^{-6}	1.9×10^{-6}
Layer 2, Si	7.5	0.7	7.5×10^{-6}	0.13×10^{-6}
Layer 3, Mo	2.5	0.71	26×10^{-6}	1.9×10^{-6}
⋮				
Layer 12, Si	3	0.71	7.5×10^{-6}	0.13×10^{-6}

[a]See Fig. 9.
[b]Layers 1 to 12 are on the front side, and layers 13 to 24 are on the back side of the silicon nitride membrane.

troscopy linewidth measurement of a Ni-like silver soft-x-ray laser source operating at 13.9 nm by Fourier spectroscopy.[17] As shown on Fig. 12, the interferogram obtained with a no-difference path between the two arms presents a contrast ranging from 76% to 92%, over the whole aperture of the beam splitter (5 mm × 5 mm). However, we note that large deformations of fringes arise from residual stresses both in the Si_3N_4 membrane and in the Mo–Si multilayer

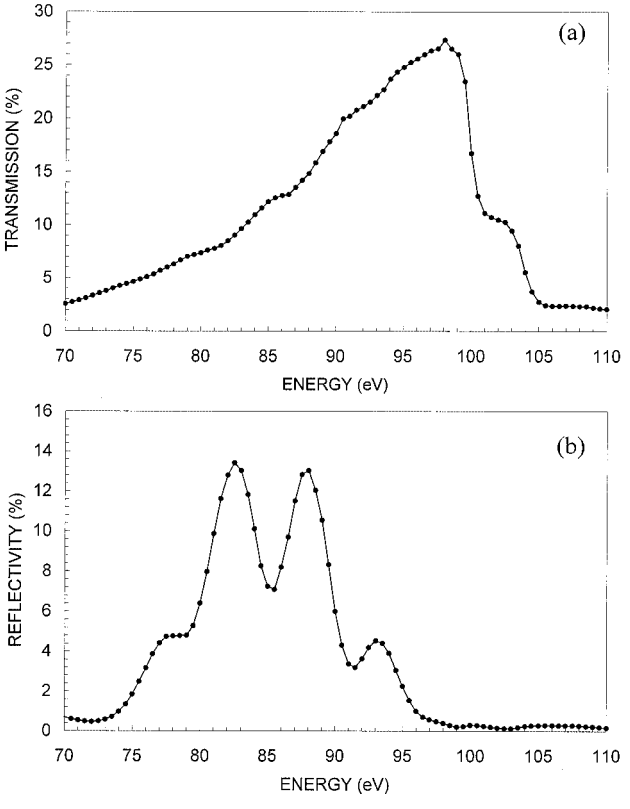


Fig. 10. Experimental transmission (a) and reflectivity (b) measured on a both-sides-coated membrane versus x-ray energy. X rays were coming on the front side. The angle of incidence was 45° and the degree of *s* polarization was approximately 60%. The multilayers have four periods and a period thickness of 10.7 nm.

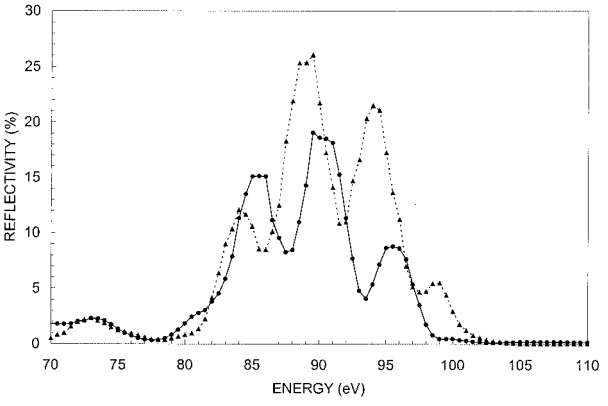


Fig. 11. Experimental reflectivities measured on two both-sides-coated membranes versus x-ray energy, with x rays coming on the front side (circles) and on the back side (triangles). The angle of incidence was 45°, and the degree of *s* polarization was approximately 60%. The multilayers have five periods and a period thickness of 10 nm.

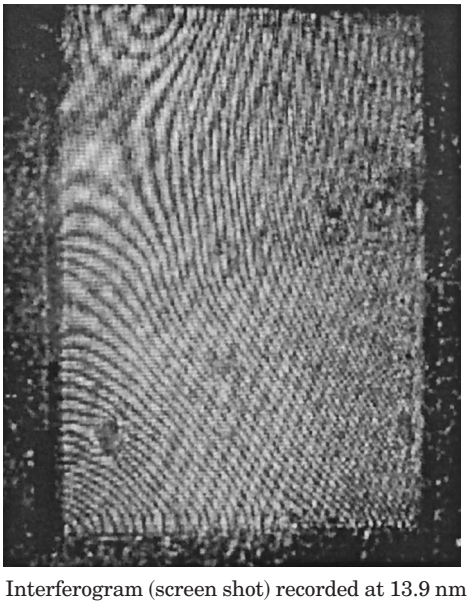


Fig. 12. Interferogram (screen shot) recorded at 13.9 nm with the Michelson interferometer with a zero-difference path difference.

coating. To prevent this kind of fringe-pattern deformation, we are performing further studies to improve the x-ray beam splitter's flatness.

The authors thank Philippe Troussel from Commissariat a l'Energie Atomique, Bruyères-le-Châtel for the access to the reflectometer of the SA23 beamline at the Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique, Orsay. Financial support for this work was partially provided by the Centre National de la Recherche Scientifique program Traitement de surfaces et dépôt de couches minces.

References

1. G. Charatis, G. E. Busch, C. L. Shepard, P. M. Campbell, and M. D. Rosen, "Hydrodynamic aspects of selenium x-ray laser targets," J. Phys. C **6,** 89–98 (1986).
2. M. K. Prasad, K. G. Estabrook, J. A. Harte, R. S. Craxton, R. A. Bosch, G. E. Busch, and J. S. Kollin, "Holographic interferograms from laser fusion code simulations," Phys. Fluids B **4,** 1569–1575 (1992).
3. S. Chakrabarti, D. M. Cotton, J. S. Vickers, and B. C. Bush, "Self-compensating, all-reflection interferometer," Appl. Opt. **33,** 2596–2602 (1994).
4. J. Svatos, D. Joyeux, D. Phalippou, and F. Polack, "Soft-x-ray interferometer for measuring the refractive index of materials," Opt. Lett. **18,** 1367–1369 (1993).
5. L. B. Da Silva, T. W. Barbee, Jr., R. Cauble, P. Celliers, D. Ciarlo, S. Libby, R. A. London, D. Matthews, S. Mrowka, J. C. Moreno, D. Ress, J. E. Trebes, A. S. Wan, and F. Weber, "Electron density measurements of high density plasmas using soft X-ray laser interferometry," Phys. Rev. Lett. **74,** 3991–3994 (1995).
6. P. Celliers, F. Weber, L. B. Da Silva, T. W. Barbee, Jr., R. Cauble, A. S. Wan, and J. C. Moreno, "Fringe formation and coherence of a soft-x-ray laser beam illuminating a Mach–Zehnder interferometer," Opt. Lett. **20,** 1907–1909 (1995).
7. D. G. Stearns, N. M. Ceglio, A. M. Hawryluk, M. B. Stearns, A. K. Petford-Long, C. H. Chang, K. Danzmann, M. Kuhne, P. Muller, and B. Wende, "TEM and X-ray analysis of multilayer mirrors and beamsplitters," in *Multilayer Structures and Laboratory X-Ray Laser Research*, N. M. Ceglio and P. Dhez, eds., Proc. SPIE **688,** 91–98 (1987).
8. N. M. Ceglio, "Revolution in X-ray optics," J. X-Ray Sci. Technol. **1,** 7–78 (1989).
9. T. Haga, M. C. K. Tinene, A. Ozawa, Y. Utsumi, S. Itabashi, T. Ohkubo, and M. Shimada, "Fabrication of semitransparent multilayer polarizer and its application to soft x-ray ellipsometer," in *Ultraviolet and X-Ray Detection, Spectroscopy, and Polarimetry III*, S. Fineschi, B. E. Woodgate, and R. A. Kimble, eds., Proc. SPIE **3764,** 13–27 (1999).
10. F. Bridou and B. Pardo, "Automatic characterization of layers stacks from reflectivity measurements. Application to the study of the validity conditions of the grazing X-rays reflectometry," J. Opt. (Paris) **21,** 183–191 (1990).
11. B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, "X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at E = 50-30000 eV, Z = 1-92," At. Data Nucl. Data Tables **54,** 181–342 (1993) or http://www-cxro.lbl.gov.
12. S. Ogura, M. Niibe, Y. Watanabe, M. Hayashida, and T. Iizuka, "Comparison among multilayer soft X-ray mirrors fabricated by electron beam, DC-, RF-magnetron sputtering and ion beam sputtering deposition," in *X-Ray Multilayers for Diffractometers, Monochromators, and Spectrometers*, F. E. Christensen, ed., Proc. SPIE **984,** 140–148 (1988).
13. T. W. Barbee, J. C. Rife, W. R. Hunter, M. P. Kowalski, R. G. Cruddace, and J. F. Seely, "Long-term stability of a Mo/Si multilayer structure," Appl. Opt. **32,** 4852–4854 (1993).
14. K. Holloway, K. Ba Do, and R. Sinclair, "Interfacial reactions on annealing molybdenum-silicon multilayers," J. Appl. Phys. **65,** 474–80 (1989).
15. D. G. Steams, R. S. Rosen, and S. P. Vernon, "Fabrication of high-reflectance Mo-Si multilayer mirrors by planar-magnetron sputtering," J. Vac. Sci. Technol. A **9,** 2662–2669 (1991).
16. C. Khan-Malek, J. Susini, A. Madouri, M. Ouahabi, R. Rivoira, F. R. Ladan, Y. Lepetre, and R. Barchewitz, "Semitransparent soft X-ray multilayer mirrors," Opt. Eng. **29,** 597–602 (1990).
17. S. Hubert, Ph. Zeitoun, É. Béchir, D. Benredjem, F. Bridou, A. Calisti, F. Delmotte, M. Idir, G. de Lachèze-Murel, S. Le Pape, M. F. Ravet, D. Ros, L. Vanbostal, and S. Hubert, "Line shape measurement of a Ni-like silver X-ray laser by mean of soft X-ray Fourier-transform spectroscopy," submitted to Phys. Rev. A.

Study of normal incidence of three-component multilayer mirrors in the range 20–40 nm

Julien Gautier, Franck Delmotte, Marc Roulliay, Françoise Bridou, Marie-Françoise Ravet, and Arnaud Jérome

We study theoretically and experimentally the increase of normal incidence reflectivity generated by addition of a third material in the period of a standard periodic multilayer, for wavelengths in the range 20 to 40 nm. The nature and thickness of the three materials has been optimized to provide the best enhancement of reflectivity. Theoretical reflectivity of an optimized $B_4C/Mo/Si$ multilayer reaches 42% at 32 nm. $B_4C/Mo/Si$ multilayers have been deposited with a magnetron sputtering system and a reflectivity of 34% at 32 nm has been measured on a synchrotron radiation source. © 2005 Optical Society of America

OCIS codes: 340.7470, 310.1860.

1. Introduction

Classical extreme UV (EUV) multilayer mirrors consist of periodic stacks of two materials with a period thickness p deposited on a substrate. Owing to material absorption, the reflectivity of a periodic multilayer can be optimized by one's changing the respective thicknesses of the two materials within the period. In the optimized multilayer[1] the most absorbing material is thinner than $p/2$. In fact, by reduction of the thickness of the most absorbing material (t_{abs}), the absorption of one period is reduced, and the light penetrates deeper into the multilayer. But reducing t_{abs} also reduces the efficiency of each period (because it is no longer a quarter-wave stack). Thus there is a competition between the efficiency of each period and the number of efficient periods (which is limited by absorption).

Different theoretical methods have been studied in order to improve multilayer reflectivity. Carniglia and Apfel in 1980 proposed a quasi-periodic structure in which p is kept constant but t_{abs} is varied throughout the multilayer.[2] Basically, near the surface, t_{abs} is low to minimize absorption, and, near the substrate, t_{abs} is high (approximately $p/2$) to improve the reflectivity.[1]

Following this idea, Singh and Braat proposed to incorporate additional materials of differing complex refractive indices in various regions of the stack.[3] In fact, they added a third (and a fourth) material and made thicknesses of the three (or four) materials that were varied from one period to the next one: Less absorbing materials are mostly present near the surface, whereas most absorbing ones are located near the substrate. At a wavelength $\lambda = 13.4$ nm, the theoretical reflectivity of this new design reaches 78.1% as compared with 75.7% for a standard multilayer. The theoretical reflectance increase at this wavelength is only 3% in relative value.

With respect to the higher wavelength range ($\lambda > 50$ nm), Larruquert has developed a theory on quasi-periodic multicomponent multilayers made of highly absorbing materials[4,5] and established a rule of selection for the material to be used within a period in order to optimize the reflectivity. Unfortunately, this theory is no longer valid in the EUV range ($\lambda < 50$ nm) because most materials are only moderately absorbing. Nevertheless, Larruquert has proposed some examples of multicomponent multilayers in the EUV (at 30.4 and 50 nm) by using the same rule of selection. In theory, these structures provide high reflectivity increases, and the main increase happens when a third material is added to a classical multilayer.[6]

The authors are with Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, Centre National de la Recherche Scientifique, Unité Mixte de Recherche 8501, Bât. 503, Centre Scientifique d'Orsay, 91403 Orsay Cedex, France. The e-mail address of F. Delmotte is franck.delmotte@iota.u-psud.fr.

Received 22 December 2003; revised manuscript received 7 July 2004; accepted 12 October 2004.
0003-6935/05/030384-07$15.00/0
© 2005 Optical Society of America

However, from a experimental point of view, to the authors' knowledge, quasi-periodic multicomponent multilayers have never been produced in the EUV range ($\lambda < 50$ nm). In fact, there are two major difficulties for producing such multilayers. The first one is the need to calibrate each material thickness, taking into account interfacial interdiffusion or intermixing that often occur during multilayer deposition. The second one is the lack of useful characterization means for such structures. So, making quasi-periodic multilayers seems not to be an efficient way to increase significantly the reflectivity as compared with the difficulties one has to overcome to produce such structures.

In the wavelength range 1.3 to 6.8 nm, Boher *et al.*[7] have studied theoretically and experimentally periodic structures with three or four materials. They demonstrated that, even with periodical structures, the addition of a third material can improve the reflectivity, and they proposed a material selection criteria.

Normal incidence mirrors for wavelengths ranging from 20 to 40 nm are of particular interest in the field of solar physics (EUV imaging telescopes) and new extreme ultraviolet (EUV) source developments (High Harmonic Generation sources, x-ray lasers, etc.). In this paper we focus on periodic multilayer structures, and we study theoretically and experimentally the increase of reflectance generated by the addition of a third material in the period for wavelengths in the range 20 to 40 nm. The first part deals with theoretical optimization of three-component periodical multilayers at $\lambda = 32$ nm. In the second part we explore the performances of these new multilayers (B_4C/Mo/Si) in the range 20 – 40 nm. In the last part we present the experimental results obtained with three-component multilayers at $\lambda = 32$ nm.

2. Three-Component Multilayer Design at $\lambda = 32$ nm

In standard multilayers (with two components), the choice of materials depends on two decisive factors: Materials must have the highest index contrast, but materials and interfaces must also be chemically stable. Different two-component multilayer mirrors have already been produced for wavelengths between 20 and 40 nm, in particular Mo/Si,[8] B_4C/Si,[9,10] and Si_3N_4/Si[11] multilayers. These three kinds of multilayer present a good reflectivity, so a high contrast index is present between the two materials in this spectral region. Moreover, the aging and thermal stability of these structures have been reported to be satisfactory. For these reasons, we have selected Mo, Si, B_4C, and Si_3N_4 materials as good candidates to produce three-component multilayers.

In this part we theoretically study the possible reflectivity enhancement due to the addition of a third material in a standard multilayer. We have calculated the reflectivity of periodic multilayers with three materials per period at $\lambda = 32$ nm, and we have determined the material thicknesses that optimize the reflectivity. Each multilayer has 40 periods (more periods are useless owing to absorption). The reflectivity is calculated at normal incidence with the iterative method.[1] We make the hypothesis that the interfaces between adjacent layers are perfect; i.e., there are no scattering losses due to interface imperfections or compound formation. The optical constants of the four selected materials versus wavelength were calculated from the scattering factors of B, C, N,[12] Mo,[13] and Si[14] and are listed in Table 1 for $\lambda = 32$ nm. In this table, n is the real part of the index, and k is the absorption coefficient. The densities are also listed. A density of 2.19 g/cm^3 is taken for amorphous silicium, which represents 94% of the density of crystalline silicium. The density of the three other materials are the tabulated density. For convenience, we have also plotted these optical constants in the complex plane on Figure 1.

Table 1. Optical Constant at 32 nm and Density of B_4C, Mo, Si, Si_3N_4[a]

Materials	n	k	Density (g/cm^3)
B_4C	0.80527	0.06334	2.52
a-Si	0.92525	0.00926	2.19
Mo	0.96369	0.42567	10.22
Si_3N_4	0.81799	0.10454	3.44

For Si we use density of amorphous silicium, 94% of the density of crystalline Si.

With these selected materials, we can make four triplets noted as (B_4C;Mo;Si), (Si_3N_4;Mo;Si), (B_4C;Si_3N_4;Si), and (B_4C;Mo;Si_3N_4). For each triplet we have to optimize the order of the materials in the stack and the nature of the top layer: There are six structure possibilities per triplet. For example, with the triplet (B_4C;Mo;Si) we can realize six multilayers noted as B_4C/Mo/Si, B_4C/Si/Mo, Si/B_4C/Mo, Si/Mo/B_4C, Mo/Si/B_4C, and Mo/B_4C/Si. In the notation B_4C/Mo/Si, the first material (B_4C) is on the top of the multilayer, and the last one (Si) is on the substrate. All the 24 combinations (six per triplet) must be optimized if we want to find the best design

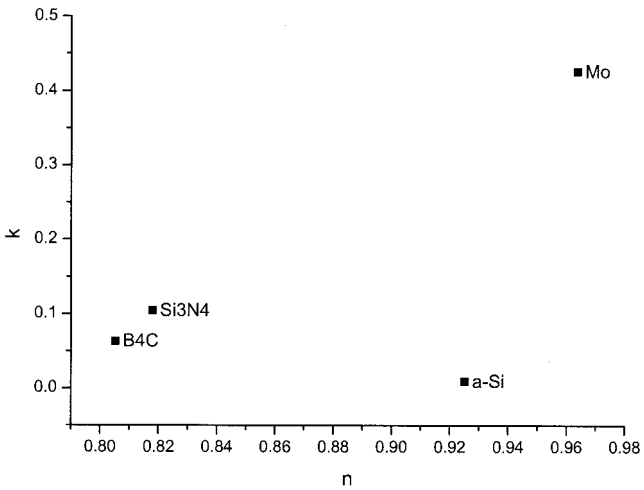


Fig. 1. Optical constants of B_4C, Mo, a-Si, and Si_3N_4 at 32 nm plotted in the complex index plane.

Table 2. Reflectivity (R) at 32 nm and Layer Thicknesses of Three-Component Multilayers Made of B_4C, Mo, and Si

Optimal Order			Nonoptimal Order		
Structure	Thicknesses (nm)	R (%)	Structure	Thicknesses (nm)	R (%)
B_4C/Mo/Si	4.1/2.2/11.3	42.0	B_4C/Si/Mo	6.1/11.6/0	34.1
Mo/Si/B_4C	2.4/11.6/3.6	37.0	Mo/B_4C/Si	3.2/0/14.2	30.5
Si/B_4C/Mo	11.5/3.8/2.3	34.3	Si/Mo/B_4C	11.7/0/5.9	26.7

For each structure, the layer thicknesses have been calculated to optimize the reflectivity.

because the multilayer reflectivity depends not only on the choice of the three materials but also on their order in the stack and on the nature of the top layer. For each combination the program numerically optimizes the thickness of each material for a wavelength and a number of period.

In Table 2 we present the results of reflectance optimization for the (B_4C;Mo;Si) triplet at $\lambda = 32$ nm. The six multilayers are classified into two columns. In the first one the addition of a third material increases the reflectivity: It is the optimal order column. In the second one the addition does not increase the reflectivity, and the optimization gives 0 -nm thickness for one material: In this nonoptimal order column, we find standard multilayers. Each line represents a different top layer: The B_4C top layer gives the best reflectivity, then Mo and Si. We can see that, for each top layer, a great increase of reflectivity is observed when the addition of a third material is in the good order. Concerning two-component multilayers, the best reflectivity is obtained for B_4C/Si and reaches 34.1%. The addition of Mo between B_4C and Si (Mo deposited on Si) allows an increase in reflectivity up to 42%, whereas the addition of Mo between Si and B_4C (Mo deposited on Si) gives no improvements. Thus the order of the stack in a three-component multilayer is crucial, as illustrated in Fig. 2. In this figure we compare the spectral response of three multilayers, calculated with IMD software.[15] The continuous curve is the simulation of a standard B_4C/Si multilayer optimized for $\lambda = 32$ nm (thicknesses are given in Table 2). The dashed curve is a simulation of the B_4C/Mo/Si multilayer previously optimized for $\lambda = 32$ nm (thicknesses are given in Table 2). The dotted curve represents the reflectivity of the same three-component multilayer with the same thicknesses but in reverse order: Si/Mo/B_4C. A relative increase of 23% can be observed in the optimal order (B_4C/Mo/Si) and a fall of 63% can be observed when we inverse the order of the stack (Si/Mo/B_4C).

Shown in Table 3 are the best results for the four triplets and the relative reflectivity increases obtained with three components instead of two. The first line is the same as the first line of Table 2. In the second column of Table 3, we present the best results of the standard multilayers. For all the triplets, the addition of a third material increases the reflectivity.

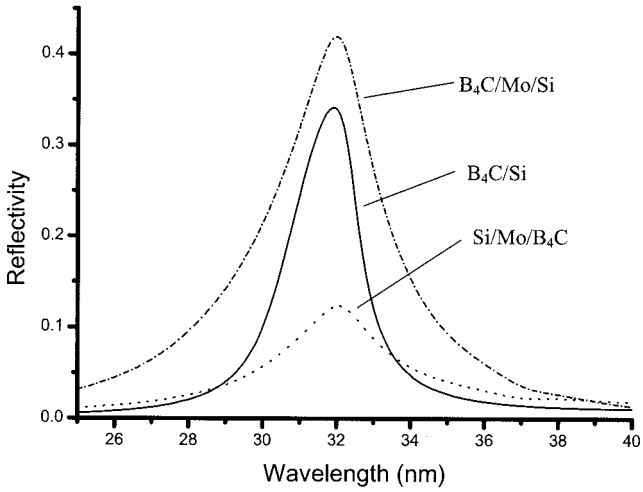


Fig. 2. Calculated reflectivity spectra of an optimized B_4C/Si multilayer (continus curve), an optimized B_4C/Mo/Si multilayer (dashed curve), and a multilayer made of the same stack in reverse order (Si/Mo/B_4C) (dotted curve) at the incidence angle of 0°.

This enhancement is in relation with the index contrast between the third material and the materials of the standard multilayer (see Fig. 1). Indeed, for standard B_4C/Si multilayers the addition of Mo with a high contrast index increases the reflectivity to 23% (in relative values), whereas for Si_3N_4 (with a low index contrast) the increase is only 2.3%. For standard Mo/Si multilayers the addition of B_4C increases the reflectivity to 37.6% while the addition of Si_3N_4, which presents a lower contrast index, a relative increase of only 18% is observed.

We note that, for the first three examples shown in Table 3, the order of the stack satisfies both Larruquert's rule[6] (material index has to run clockwise in the complex plane represented on Fig. 1) and Boher's criterium[7] (the more absorbing material must be deposited on the less absorbing material). Nevertheless, for the last triplet (B_4C;Mo;Si_3N_4) the optimal structure B_4C/Mo/Si_3N_4 does not satisfy these selection rules. This shows that these two rules are not valid in the general case for wavelengths between 20 and 40 nm. This is, in fact, not really surprising. On the one hand, Boher's criterium is derived from a particular simulation study and is not supported by any theoretical calculation. On the other hand, the demonstration of Larruquert's rule is not valid for wavelengths below 50 nm.[6] However, concerning the selection of materials, Larruquert's selection rules and Boher's selection criteria can be used as a guide to find the optimal structure.

In conclusion, we observe by way of simulations that, in all cases, the addition of a third material can increase the reflectivity when the order of the stack is optimized. Concerning the selection of materials, it seems to be clear that, on a theoretical point of view, one has to choose materials with the highest optical index contrast for each material pair. Indeed, that is in agreement with Larruquert's selection rules and with Boher's selection criteria. As mentioned previ-

Table 3. Reflectivity (R) and Optimized Thicknesses for Three-Component Multilayers and Standard Multilayers

Three-Component Multilayers				Standard Multilayers		
Structure	Thicknesses (nm)	R (%)	Relative Increase (%)	Structure	Thicknesses (nm)	R (%)
$B_4C/Mo/Si$	4.1/2.2/11.3	42.0	23.0	B_4C/Si	6.1/11.6	34.1
$Si_3N_4/Mo/Si$	2.7/2.5/12.3	36.2	18.4	Mo/Si	3.2/14.2	30.5
$B_4C/Si_3N_4/Si$	4.4/1.8/11.5	34.9	2.3	B_4C/Si	6.1/11.6	34.1
$B_4C/Mo/Si_3N_4$	5.9/6.2/6.6	16.1	28.8	B_4C/Mo	7.0/8.9	12.5

Best results for each triplet are reported.

ously, from an experimental point of view, one also has to take into account the stability of materials and interfaces, and this point provides an additional restriction to the theoretical possibilities.

Concerning the order of the material in the stack, Larruquert's rule or Boher's criterium failed to predict the optimal order in the general case, for wavelengths ranging from 20 to 40 nm. Owing to this lack of reliable rules for defining the optimal order, all possible combinations have to be explored in simulation to find the best design (i.e., optimal order and thicknesses of materials in the stack).

3. Three-Component $B_4C/Mo/Si$ Multilayer in the Range 20–40

In Section 2 we have show that $B_4C/Mo/Si$ three-component multilayers present the highest reflectivity at $\lambda = 32$ nm. In this part we study the theoretical performances of such a structure versus wavelength and versus the number of periods in the stack.

Figure 3 shows the calculated reflectance versus wavelength for the Mo/Si, B_4C/Si, and $B_4C/Mo/Si$ multilayers. For each wavelength, the design has been optimized with our program. For all kinds of multilayer, the reflectance decreases (as expected) when the wavelength increases far from the Si7 absorption edge at 12.4 nm. At 13 nm, when optimizing the three-component $B_4C/Mo/Si$ multilayer, we find a standard Mo/Si multilayer (i.e., B4C thickness = 0). For all other wavelengths in the range 20 to 40 nm, we find an increase of reflectivity by using the three-component multilayer instead of standard Mo/Si or B_4C/Si multilayers.

The optimization of the reflectivity at $\lambda = 32$ nm versus the number of periods is shown in Fig. 4 for the $B_4C/Mo/Si$ three-component multilayer and the standard multilayer B_4C/Si. For each number of periods, we optimized material thicknesses in order to have the optimal reflectance at $\lambda = 32$ nm. In this graph we note that the number of periods (N) necessary to have 99% of the asymptotic reflectivity is lower for a three-component multilayer ($N = 14$) than for a standard multilayer ($N = 22$). This means that the number of layers (directly related to the number of interfaces) required to obtain 99% of the asymptotic reflectivity is approximately the same in both cases: 42 layers for the three-component multilayer and 44 for the standard multilayer. Nevertheless, the total thickness is lower for the three-component multilayer, so total absorption may be lower too, and reflectivity may be increased. Indeed, the great advantage of three-component multilayers

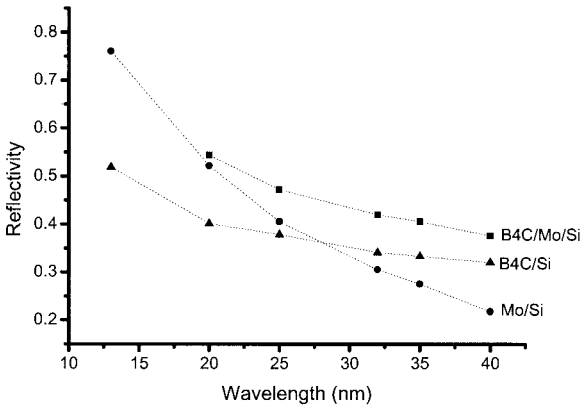


Fig. 3. Peak reflectance versus wavelength for Mo/Si (circles), B_4C/Si (triangles), and $B_4C/Mo/Si$ (squares) optimized multilayers. For each wavelength, the design has been optimized with our program.

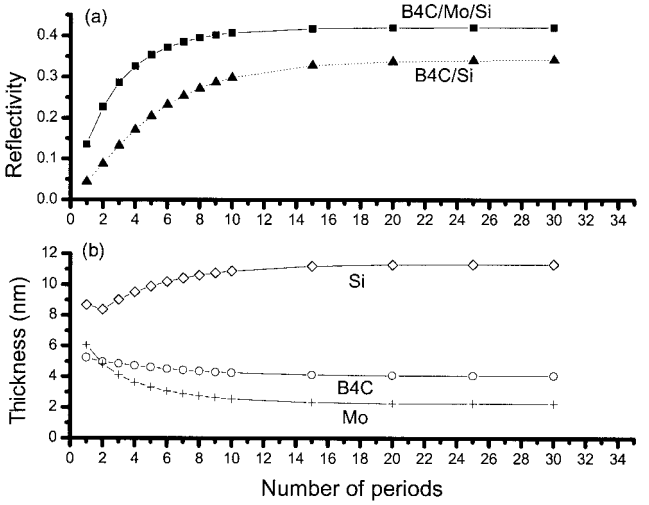


Fig. 4. (a) Optimized reflectance of $B_4C/Mo/Si$ multilayer (squares) and B_4C/Si multilayer (triangles) versus number of periods in the stack. (b) Optimized thicknesses of Mo (crosses), B_4C (circles), and Si (rhombuses) corresponding to $B_4C/Mo/Si$ reflectance shown in (a) versus number of periods.

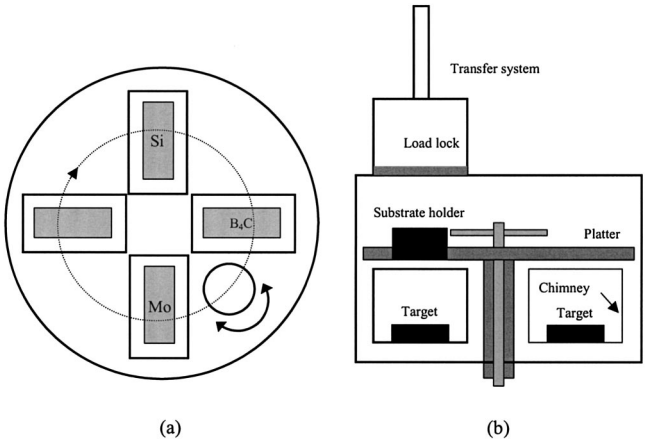


Fig. 5. Schematic of the magnetron sputtering deposition chamber: (a) top view and (b) side view.

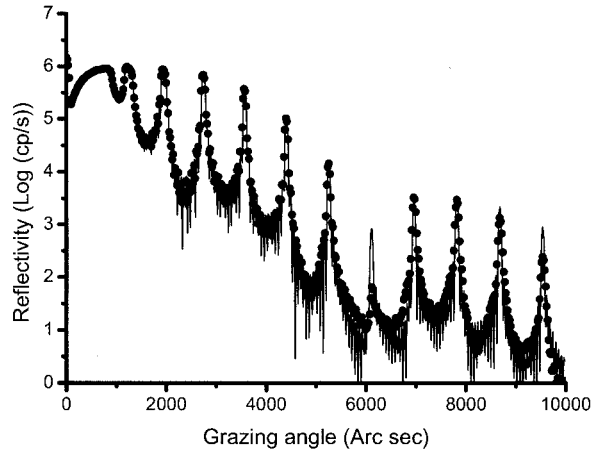


Fig. 6. Grazing-angle reflectometry at 0.154 nm of a $B_4C/Mo/Si5$ multilayer: experimental data (dots) and fitted curve (solid curve).

is that this structure allows one to introduce more interfaces on a smaller thickness, which provides more contributions to the reflectance for the same absorption rate.

4. Three-Component $B_4C/Mo/Si$ Multilayer Fabrication and Characterization

Multilayers are deposited by use of a magnetron sputtering system equipped with four cathodes. The 80 mm × 200 mm rectangular targets are mounted in the bottom of the chamber with chimneys that limit the deposition region to the area directly above them. A background pressure of 2.7×10^{-6} Pa is obtained with a cryogenic pump. One deposits successive layers scanning the substrate above the target at a distance of 10 cm (Fig. 5). The thickness of each layer is controlled by the rotation velocity of the substrate on the target box (the motions are similar to those described by Montcalm *et al.*).[16] The typical velocity is adjusted from 0.2°/s to 2°/s. The substrate is rotating around its axis of symmetry at 50 rpm in order to obtain a good azimuthal uniformity.

During the process, we use a 0.27-Pa argon pressure in the deposition chamber. The plasma discharges are established with a rf power of 150 W for B_4C and Si targets and a dc of 0.19 A for the Mo target. The effective deposition rates for the different materials are indicated in Table 4. Multilayers are deposited onto 2-in. (1 in. = 2.54 cm) Si polished wafers.

After deposition, the multilayer structure is controlled by means of the grazing-incidence x-ray reflectometry at 0.154 nm.[17] By fitting the experimental data we can deduce the period of the multilayer, the thicknesses of the different layers, the average interfacial roughnesses, and the material complex index at 0.154 nm. Several multilayers have been deposited and controlled, and one representative example is shown in Fig. 6 with a fitted curve. The different parameters of the fitted curve are shown in Table 5. Notice that all the Bragg peaks up to the 11th order are well defined on the experimental data: This shows that the multilayer periodicity is good. Moreover, all estimated interfacial rouhnesses reported in Table 5 are very low (less than 0.6 nm). On this example we fit a period of 17.6 nm with the following composition: $d_{B_4C} = 4.2$ nm, $d_{Mo} = 2.2$ nm, and $d_{Si} = 11.2$ nm (d_x represents the thickness of the material x). One can see that the index contrast between B_4C and Si is low at this wavelength, and this may induce a relative indetermination on the respective thicknesses of these two layers. However, simulations show that the reflectivity of three-component multilayers decreases only slightly when thicknesses are varied from the optimal calculated thickness.

Reflectance in the EUV range has been measured on the ELETTRA synchrotron radiation source. Measurements have been carried out on the Bending Magnet for Emission Absorption and Reflectivity (BEAR) beamline[18] with an incidence angle of 10 deg

Table 4. Effective Deposition Rates of Si, B_4C, and Mo Layers

Materials	rf Power (W)	dc Current (A)	Deposition Rate (nm/s)
Si	150	150	
Mo			0.19
B_4C	0.11	0.014	0.13

Table 5. $B_4C/Mo/Si$ Multilayer Parameters Deduced from x-Ray Grazing-Angle Reflectometry Measurement

Layer	Thickness (nm)	Roughness (nm)	1-n ($\times 10^{-6}$)	Absorption k ($\times 10^{-6}$)
Si Substrate	∞	0.38	7.7	0.13
1−Si	11.2	0.52	7.28	0.13
2−Mo	2.67	0.41	25.95	1.68
3−B_4C	4.49	0.58	6.7	0.15
. . .				
60−B_4C	4.49	0.58	6.7	0.15

[a]These parameters correspond to the fit curve of Fig. 6.

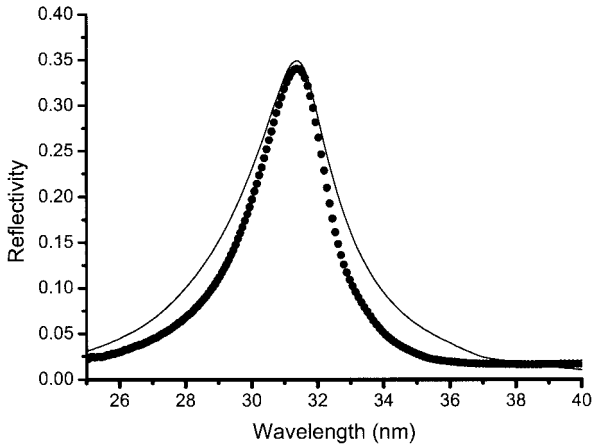


Fig. 7. Measured and calculated reflectivities of a $B_4C/Mo/Si$ three-component multilayer at 10 deg in S polarization. Parameters of the simulated curve are given in the text.

(near normal incidence) in S polarization. We used a normal incidence monochromator with an energy resolution, $E/\Delta E$, above 2000 and a silicon photodiode detector. The experimental reflectance versus wavelength of a $B_4C/Mo/Si$ multilayer is shown in Fig. 7. The period of this multilayer, deduced from grazing-incidence x-ray reflectometry measurements, is 18.1 nm.

We have measured a reflectance of 34%. This represents a relative increase of 29% as compared with the best reflectance obtained in this wavelength range (26.5% for Si/B_4C).[9] We have also plotted on Fig. 7 the curve calculated with thicknesses and roughnesses deduced from grazing-incidence x-ray reflectometry measurements. The experimental spectrum and the calculated one are in quite good agreement. However, differences in reflectance and bandpass can be seen, and the reasons for this discrepancy are still under investigation. Concerning long-term stability, we have measured on an ELETTRA synchrotron radiation source a $B_4C/Mo/Si$ multilayer after eight months' storage in air: The peak reflectance is 34%, and the peak position has not shifted with time.

5. Conclusion

The optimization design, fabrication, and characterization of three-component periodic multilayers have been described. Simulations show that the use of a third material allows an important increase of the reflectance if the order of the three materials in the stack is optimized. Owing to their high reflectance and chemical stability in standard multilayers, we have selected in a theoretical study Mo, Si, B_4C, and Si_3N_4 materials as good candidates to produce three-component multilayers in the wavelength range 20 to 40 nm. The nature and thickness of the three materials have been optimized to provide the best enhancement of the calculated reflectivity. At $\lambda = 32$ nm, further enhancement is obtained by the optimization of a $B_4C/Mo/Si$ multilayer (with B_4C is on the top and Si on the substrate). We obtain a calculated reflectivity of 42%, whereas the theoretical reflectivity of B_4C/Si (which is the best design with two materials for this wavelength) is only 34%. Simulations show that $B_4C/Mo/Si$ multilayers are also promising for other wavelengths in the range 20 to 40 nm.

$B_4C/Mo/Si$ multilayers with an optimized number of periods have been deposited with a magnetron sputtering system and characterized by x-ray grazing reflectometry and synchrotron radiation measurements. We obtained a experimental reflectivity of 34% at $\lambda = 32$ nm, which represents a relative increase of 29% as compared with the best standard multilayer reflectivity reported in the literature.

The authors thank Bruno Pardo for fruitful discussions and Stefano Nannarone, A. Giglia, and the complete BEAR team at ELETTRA for their assistance during synchrotron radiation measurements. All multilayer depositions have been carried on the deposition machine of the Centrale d'Élaboration et de Métrologie des Optiques X implemented by Pôle d'Optique des Rayons X d'Orsay. Financial support for this research was partially provided by the Centre National de la Recherche Scientifique program Nouveaux Materiaux-Fonctionnalités Nouvelles.

References

1. E. Spiller, *Soft X-Ray Optics* (SPIE, Bellingham, Wash., 1994).
2. C. K. Carniglia and J. H. Apfel, "Maximum reflectance of multilayer dielectric mirrors in the presence of slight absorption," J. Opt. Soc. Am. **70,** 523–534 (1980).
3. M. Singh and J. J. M. Braat, "Design of multilayer extreme-ultraviolet mirrors for enhanced reflectivity," Appl. Opt. **39,** 2189–2197 (2000).
4. J. I. Larruquert, "Reflectance enhancement with subquarterwave multilayers of highly absorbing materials," Opt. Soc. Am. A **18,** 1406–1414 (2001).
5. J. I. Larruquert, "New layer-by-layer multilayer design method," Opt. Soc. Am. A **19,** 385–390 (2002).
6. J. I. Larruquert, "Reflectance enhancement in the extreme ultraviolet and soft x rays by means of multilayers with more than two materials," Opt. Soc. Am. A **19,** 391–397 (2002).
7. P. Boher, L. Hennet, and Ph. Houdy, "Three materials soft x-ray mirrors: theory and application," in *Advanced X-Ray/EUV Radiation Sources and Applications*, J. P. Knaueur and G. K. Shenoy, eds., Proc. SPIE **1345,** 198–212 (1990).
8. M. F. Ravet, F. Bridou, X. Zhang-Song, A. Jerome, F. Delmotte, R. Mercier, M. Bougnet, P. Bouyries, and J. P. Delaboudiniere, "Ion beam deposited Mo/Si multilayers for EUV imaging applications in astrophysics," in *Advances in Optical Thin Films*, C. Amra, N. Kaiser, and H. Macleod, eds., Proc. SPIE **5250,** 99–108 (2004).
9. D. L. Windt, S. Donguy, J. Seely, B. Kjornrattanawanich, E. Mgullikson, C. C. Wlton, L. Golub and E. DeLuca, "EUV multilayers for solar physics," in *Optics for EUV, X-Ray, and Gamma-Ray Astronomy*, O. Citterio and S. L. O'Dell, eds., Proc. SPIE **5168,** 1–11 (2004).
10. F. Delmotte, M. F. Ravet, F. Bridou, X. Song, A. Jerome, S. Boujdayane, S. Hubert, P. Zeitoun, M. Idir, and P. Troussel, "Depot et calibration de multicouches pour l'optique XUV dans la gamme 10–30 nm," J. Phys. IV France **108,** 255–258 (2003).

11. P. Boher, Ph. Houdy, L. Hennet, P. Müller, Z. G. Li, and D. J. Smith, "Silicon/silicon oxide and silicon/silicon nitride multilayers for extreme ultraviolet optical applications," Opt. Eng. **30,** 1049–1060 (1991).
12. B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, "X-ray interactions: photoabsorption, scattering, and reflection at $E = 50$–30000 eV, $Z = 1$–92," At. Data Nucl. Data Tables **54,** 181–342 (1993).
13. R. Soufli and E. M. Gullikson, "Absolute photoabsorption measurements of molybdenum in the range 60 to 930 eV for optical constant determination," Appl. Opt. **37,** 1713–1719 (1998).
14. R. Soufli and E. M. Gullikson, "Reflectance measurement on clean surfaces for the determination of optical constants of materials in the EUV/soft x ray region," Appl. Opt. **36,** 5499–5507 (1997).
15. IMD software developed by David Windt, see http://cletus.phys.columbia.edu/~win.
16. C. Montcalm, S. Bajt, P. B. Mirkarimi, E. Spiller, F. J. Weber, and J. A. Folta, "Multilayer reflective coatings for extreme-ultraviolet lithography," in *Emerging Lithographic Technologies II*, Y. Vladimirsky, ed., Proc. SPIE **3331,** 42–50 (1998).
17. F. Bridou and B. Pardo, "Automatic characterization of layers stacks from reflectivity measurments. Application to the study of the validity conditions of the grazing X-rays reflectometry," J. Optics (Paris) **21,** 183–191 (1990).
18. F. Borgatti, A. De Luisa, B. Doyle, A. Giglia, N. Mahne, I. Pasquali, M. Pedio, G. Selvaggi, S. Nannarone, G. Naletto, M. G. Pelizzo, and G. Tondello, "The new Bear beamline: a short presentation," elettra news 47(2003), see http://www.elettra.trieste.it/science/elettranews/volume47/en117.html.

Appl. Phys. A 88, 719–725 (2007)
DOI: 10.1007/s00339-007-4041-6

Applied Physics A
Materials Science & Processing

J. GAUTIER[1,✉]
F. DELMOTTE[1]
F. BRIDOU[1]
M.F. RAVET[1]
F. VARNIERE[1]
M. ROULLIAY[1]
A. JEROME[1]
I. VICKRIDGE[2]

Characterization and optimization of magnetron sputtered Sc/Si multilayers for extreme ultraviolet optics

[1] Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, CNRS, Univ. Paris Sud, Campus Polytechnique, RD128, 91127 Palaiseau Cedex, France
[2] Institut des NanoSciences de Paris, Campus Boucicaut, 140 rue de Lourmel, 75015 Paris, France

Received: 28 November 2006/Accepted: 4 April 2007
Published online: 23 May 2007 • **© Springer-Verlag 2007**

ABSTRACT Scandium/silicon multilayers have been deposited by magnetron sputtering and characterized by several techniques. Experimental peak reflectances of 0.22 and 0.37 have been measured respectively at wavelengths of 40 nm and 46 nm, for 10° incidence angle. The corresponding theoretical values for a perfect Sc/Si structure are respectively 0.38 and 0.57. In order to explain these differences between calculated and measured reflectivity, thin film and multilayer characterizations have been done. Effects of multilayer imperfections on the reflectivity have been estimated independently by means of simulation. Based on these results, a new design of Sc/Si multilayer is proposed with top layer thickness optimization. With this design, the experimental peak reflectance reaches 0.46 at a wavelength of 46 nm.

PACS 78.67.Pt; 78.66.-W; 81.15.Cd

1 Introduction

The wavelength region between 40 and 50 nm is promising for different applications such as a capillary-discharge laser [1], high harmonic generation [2] or solar imaging application [3]. All these applications need high reflectance coated mirrors for beam manipulation.

Uspenkii et al. first proposed the use of Sc/Si multilayer for this spectral region [4, 5]. Since then, few studies have been published, mainly dealing with thermal stability issues [6–9] or with damages induced by intense EUV pulses [10]. Several materials, such as W, Cr or B_4C have been proposed as a thin barrier layer in order to improve the thermal stability [6, 8, 9]. In a previous paper [11] we have shown that B_4C and ScN barrier layers improve thermal stability and that the thermal damage threshold increases with the barrier layer thickness (for thicknesses in the range of 0.3 to 1.5 nm). We have also found that Sc/Si without a barrier layer present higher reflectivity and are stable after 500 days of aging at room temperature. This means that Sc/Si without barrier layers could be used in applications that do not require thermal stability of coatings at elevated temperatures.

✉ Fax: +33-1-69319898, E-mail: julien.gautier@ensta.fr

Until recently, the lack of reliable indices for scandium in this spectral range made the simulation and the optimization of such multilayers very difficult. Simulations using the scandium indices published by Henke et al. [12] predict an optimum normal incidence reflectivity at 36 nm, whereas experimentally the optimal reflectivity has been found around 46 nm [11, 13]. In 2004, Uspenskii et al. published more realistic optical indices of Sc in this wavelength region [14].

In this paper, we present a comparison between experimental and simulated performances of Sc/Si multilayers deposited by magnetron sputtering and we propose an optimization of Sc/Si multilayer design. After a brief description of the experimental setup (Sect. 2), we present in Sect. 3 the physico-chemical and optical characterization of magnetron sputtered Sc/Si multilayers. Section 4 deals with simulation and optimization of Sc/Si multilayer reflectance by using the scandium optical constant published recently by Uspenskii et al. [14]. First, we study the effect of multilayer imperfection on the simulated reflectance. Then, as a conclusion to this study, we propose an optimization of the Sc/Si multilayer design in order to improve its reflectivity.

2 Experimental setup

2.1 *Multilayers deposition*

Multilayers are deposited using a magnetron sputtering system equipped with four cathodes. Figure 1 gives a top view of the chamber. The 80×200 mm rectangular targets are mounted in the bottom of the chamber with chimneys that limit the deposition region to the area directly above them. A background pressure of 2.10×10^{-8} Torr is obtained with a cryogenic pump. Successive layers are deposited by scanning the substrate above the target at a distance of 10 cm. The thickness of each layer is controlled by the velocity of the substrate above the target. The typical velocity is adjusted from 0.2°/s to 2°/s. The substrate holder rotates around its center at 50 rpm in order to obtain good azimuthal uniformity. For Sc/Si multilayer deposition, we used 99.999% pure silicon and 99.95% scandium targets. A 99.95% pure molybdenum target was used for buffer layer deposition in the case of silicon thin film characterization. A 99.5% boron carbide target has been used for capper layer on one Sc/Si sample.

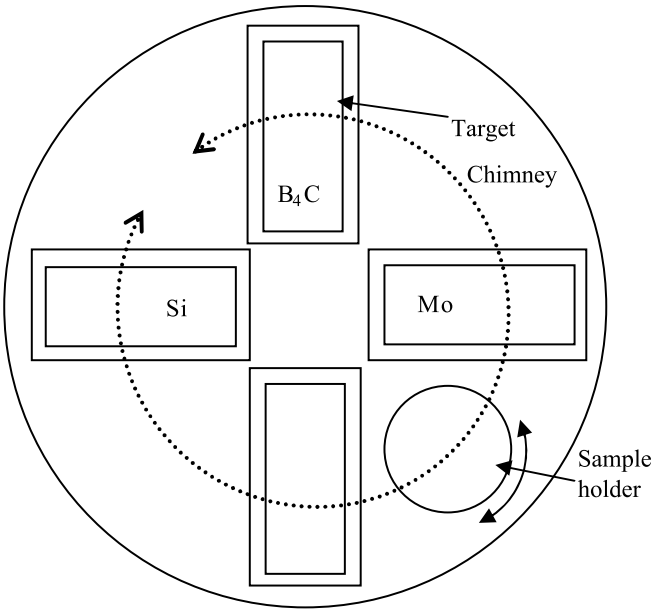


FIGURE 1 Scheme of the magnetron sputtering deposition chamber (top view)

During the process, we use a 2 mTorr argon pressure in the deposition chamber. The plasma discharges are established with a rf power of 150 W for Si and B_4C and a dc current of 0.19 A and 0.2 A for the Mo and Sc targets, respectively. The sputtering rates were in the range of 0.01 to 0.2 nm/s, depending on the material. The Sc/Si multilayers were deposited on 0.5 mm thick Si(100) substrates. All multilayer samples consist of 15 bilayers with silicon on top, unless otherwise noted.

2.2 *Grazing incidence X-ray reflectometry (GIXR)*

After deposition, the Sc/Si multilayers were analyzed by Cu K_α grazing incidence X-ray reflectometry (GIXR) at $\lambda = 0.154$ nm in $\theta/2\theta$ mode. The angular resolution of the reflectometer is better than 0.001 degree. By fitting the experimental data, we can deduce thicknesses of

the layers, the interfacial roughnesses and the material indices ($n = 1 - \delta + i \times K$) at 0.154 nm [15]. The term δ is the unit decrement of the refractive index and K the index imagery part. In some cases, the use of a Fourier transform method is helpful for a primary analysis of the results [16, 17].

2.3 *EUV reflectance measurement on synchrotron radiation source (SR)*

Reflectance in the EUV range has been measured on ELLETRA synchrotron radiation source. Measurements have been carried out on the BEAR beamline with an incidence angle of 10 degrees (near normal incidence) in 90% S-polarization. We used a normal incidence monochromator with an energy resolution, $E/\Delta E$, above 2000 and a silicon photodiode detector [18].

2.4 *Rutherford back scattering analysis (RBS)*

The atomic density and impurity content of Sc and Si thin films have been determined by $^4He^+$ Rutherford back scattering (RBS) at 2 MeV on a Van de Graff accelerator. We analyzed and registered the energy of backscattering at 165° by the elements present in the film and in the substrate. For the absolute measurements of atomic density, we used a reference sample of Bi atoms implanted in Si ($5.65 \times 10^{15} \pm 2\%$ Bi atoms/cm^2). RBS gives information on the total amount of atom per surface area. By dividing this amount by the thin film thickness (deduced from GIXR) one can determine the density of the thin film.

3 Experimental results

3.1 *RBS analyses of scandium and silicon thin films*

Four scandium thin films with different thicknesses have been deposited on a silicon substrate and characterized by RBS. A capper layer of 3 nm silicon has been deposited on top of scandium films in order to avoid oxidation of scandium. The thicknesses of each film were determined by grazing incidence X-ray reflectometry. These thicknesses range from 10 to 60 nm. A typical RBS spectrum is plotted on Fig. 2a for Sc thickness of 40 nm. The number of Sc atoms per cm^2 is calculated by integrating the Sc peak. Figure 2b shows the number of scandium atoms per cm^2 versus the thin film thickness. With a linear fit of these points we determine a density of 2.8 g cm^{-3}. This density is close to the theoretical density of scandium bulk film (2.98 g cm^{-3}). We have also detected a small quantity of iron and tantalum in the scandium film. These impurities are certainly due to the target fabrication. A concentration of 430 ppm for tantalum and 1000 ppm for iron have been estimated.

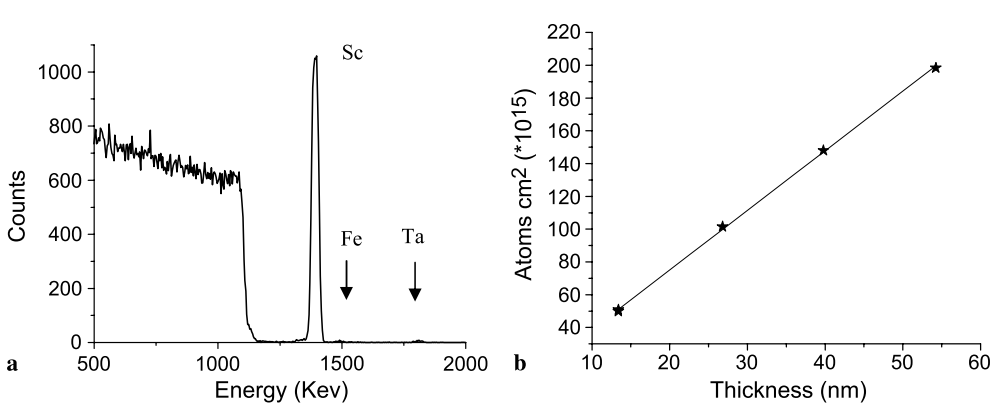


FIGURE 2 (**a**) RBS spectrum of a 40 nm thick scandium thin film deposited on silicon. (**b**) Sc atomic density versus Sc thickness

Concerning silicon thin films, four samples with thickness ranging from 75 to 135 nm have been prepared for RBS analyses. For all samples, a 100 nm molybdenum thin film has been deposited between the silicon substrate and the silicon thin film. With this molybdenum thin film the peak due to the substrate and the peak due to the silicon thin film are well separated. Indeed the $^4He^+$ ions back scattered by the substrate have lost energy by crossing the molybdenum film. An example of a RBS spectrum obtained from this kind of sample with 75 nm thick silicon is plotted in Fig. 3a. One can see a high energy peak due to backscattering from the Mo atom and a low energy peak (close to substrate signal) related to the Si atom. A third peak appears between Si and Mo peaks at an energy related to backscattering from argon atoms. These argon atoms are located in the Si thin film and not in the Mo thin film. They are probably incorporated from the process gas during Si thin film deposition. The numbers of Si and Ar atom per cm^2 have been calculated from the spectrum obtained from each sample. The results are plotted in Fig. 3b as a function of silicon thickness. A linear fit of the results gives a density of 2.1 g cm^{-3} for the silicon thin film and Ar contamination of 4%. This density is similar than the theoretical density of amorphous silicon (2.19 g cm^{-3}).

3.2 *GIXR analyses of* Sc/Si *multilayers*

Six Sc/Si multilayers with period ranging from 21.5 to 25.4 nm and with different scandium over silicon ratios have been deposited and characterized by GIXR. One typical GIXR spectrum is shown in dots in Fig. 4. Notice that all the Bragg peaks up to the 15th order are very well defined on the experimental data: this means that the multilayer periodicity is good. The line in Fig. 4 represents the fitted curve, with fitted parameters listed in Table 1. The Fourier transform analysis of the experimental curves reveals that there are four layers in the period, instead of two. This fact can be explained by the presence of intermixing layers with a δ value clearly different from the Si and Sc ones. A model with four different layers (Sc, interlayer1, Si and interlayer2) has been used and allows to fit correctly the variation of intensity of the Bragg peaks. This model takes into account the formation of a mixing compound on the interface between Si and Sc. Interlayer 1 is located at the Si on Sc interface whereas Interlayer 2 is at the Sc on Si interface.

	Thickness (nm)	Roughness (nm)	$\delta(\times 10^{-6})$	$K(\times 10^{-6})$
Si substrate				
...				
Sc	8.3	0.4	9.1	0.55
Interlayer 1	2.5	0.3	10.02	0.66
Si	12	0.2	6.54	0.15
Interlayer 2	2.1	0.6	11.15	0.66
...				
Top Si layer				

TABLE 1 Sc/Si multilayer parameters deduced from the fit of GIXR measurements plotted in Fig. 4. δ is the unit decrement of the refractive index and K the index imagery part. Multilayers consist of 15 bilayers

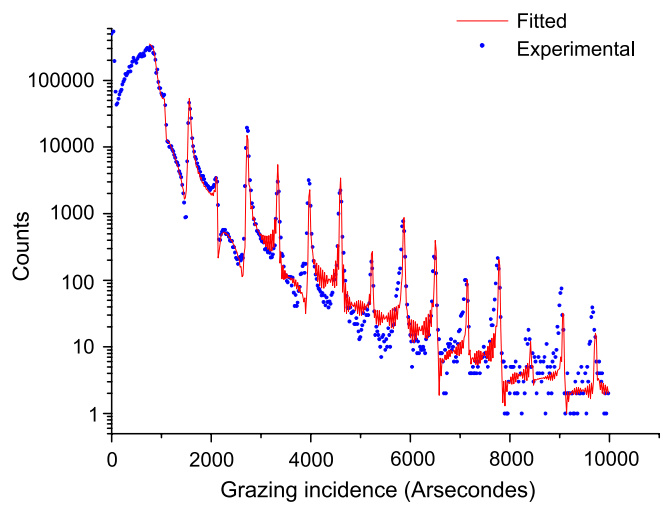


FIGURE 4 Grazing incidence reflectometry at 0.154 nm of a Sc/Si multilayer. Multilayers consist of 15 bilayers

We have also reported in Table 2 the range of values obtained for each relevant parameter, estimated from the fit of six different samples. The interfacial layer thicknesses fitted are scaled between 1 to 2.5 nm. These values are in agreement with values deduced from HRTEM reported in the literature [7, 12]. The δ value of interfacial layer ranges between 9.8×10^{-6} to 11.1×10^{-6}. This index is close to the theoretical value of the ScSi compound (10.45×10^{-6}), calculated from Si and Sc scattering factors and using the ScSi theoretical density value (3.36 g/cm^2).

The estimated roughnesses at each interface are in the range of 0.2 to 0.6 nm. Estimated scandium and silicon δ

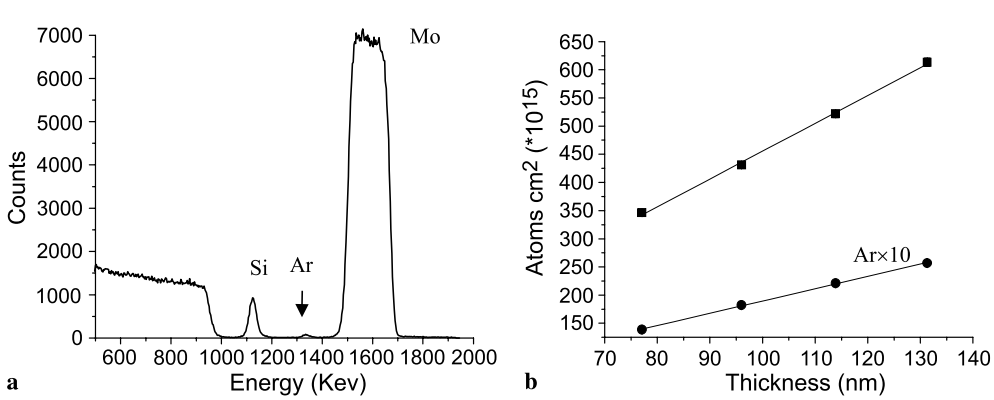


FIGURE 3 (**a**) RBS spectrum of a 75 nm thick silicon thin film deposited on silicon substrate with Mo buffer layer. (**b**) Si and Ar atomic density versus Si thickness (Ar atomic density is plotted multiplied by ten)

Parameters	Layers	Minimum–maximum
Thickness (nm)	Interlayer 1	1.6–2.5
	Interlayer 2	1.5–2.0
Interfacial roughness (nm)		0.2–0.6
$\delta(\times 10^{-6})$	Sc	8.6–9.7
	Interlayer 1	10.3–11.2
	Si	6.2–7.4
	Interlayer 2	7.4–11.0

TABLE 2 Sc/Si multilayer parameters values deduced from the fit of six different samples. For each parameter only minimum and maximum values are given. For roughness parameter we did not distinguish between the different interfaces. Multilayers consist of 15 bilayers

values at 0.154 nm are in the range 8.6×10^{-6} to 9.2×10^{-6} and 6.2×10^{-6} to 7.4×10^{-6}, respectively. These values are in agreement with theoretical values: 9×10^{-6} for scandium and 7.1×10^{-6} for amorphous silicon.

It should be noted that, Sc/Si multilayers fittings done by using a two-layer model give very poor results as compared with those done with a four-layer model. In fact, this is generally not true for all multilayer systems. For example, with Mo/Si multilayers, we have shown that, even if $MoSi_x$ interlayers exists, a two-layer model allows to fit the GIXR measurement [19]. In this case, the GIXR measurements at 0.154 nm is not sensitive to interlayers. The particularity of the Sc/Si system is that the δ values for Sc_xSi_y interlayers are higher than δ values for each pure material. This makes GIXR measurements very sensitive to the occurrence of interlayers. In fact, this induces a particular index profile in the multilayer that could not be simulated with a two-layer model.

3.3 Sc/Si *reflectance measurement on synchrotron radiation*

The EUV reflectance spectra of these Sc/Si multilayers have been measured on a SR facility in the wavelength range $\lambda = 25$ nm to $\lambda = 65$ nm. Figure 5 shows the experimental reflectance versus wavelength obtained with two different samples: a multilayer with a 21.5 nm period and a multilayer with a 24.9 nm period. The reflectance peak value is about 0.22 at $\lambda = 40$ nm for the first one and reaches 0.37 at $\lambda = 46$ nm for the second one. We have also plotted on Fig. 5 the theoretical curve calculated with a perfect Sc/Si structure. Qualitatively, there is a good agreement between simulation and measurements. The general shape of reflectance is well simulated for both samples. This indicates optical constants used for Si and Sc in the simulation are well adapted in our case. However, one can notice important disagreement between experimental and simulated peak reflectance, which could be due to multilayer defects. We will discuss the reason for such differences in the following section.

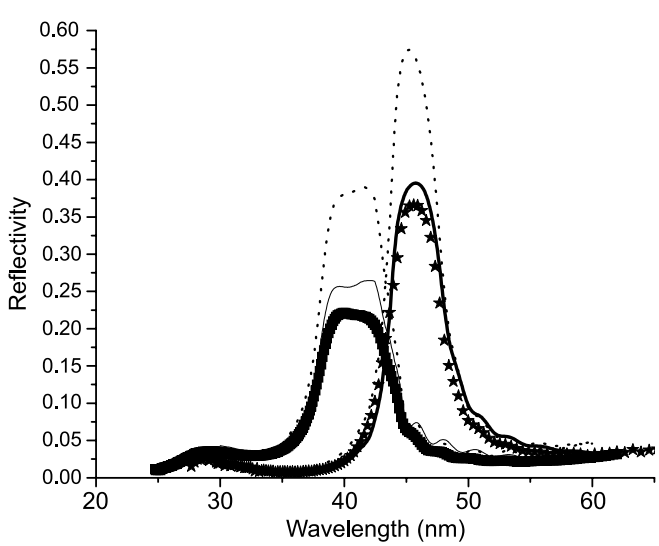


FIGURE 5 Experimental reflectivity versus wavelength of Sc/Si multilayer with a 21.5 nm (*square*) and 24.9 nm (*star*) periods. *Dashed line*: calculated reflectivity of Sc/Si multilayer with Si top layer. *Full line*: calculated reflectivity of Sc/Si multilayer with a 1.8 nm Si native oxyde top layer. Multilayers consist of 15 bilayers

4 Simulation and optimization

4.1 *Effect of multilayer imperfections on the simulated reflectance*

In order to understand the observed differences, we have simulated the reflectance of a Sc/Si multilayer taking into account different imperfections that we have characterized in the previous part: interfacial roughness, interfacial compound formation, impurities. We have reported in Table 3 the effect of these different structural parameters on the calculated peak reflectance at $\lambda = 40$ nm and $\lambda = 46$ nm. Simulations have been done using IMD software [20]. The Sc index measured by Uspenskii et al. is used for the simulation [14]. Optical constants of silicon and silicon oxide were taken from [21] for $\lambda < 41$ nm and [22] for $\lambda > 41$ nm. All simulations have been done for a 10° incidence angle with a degree of *s*-polarization of 90%. ScSi interfacial layer indices and thin films indices with impurities were calculated using the scattering factors as is described in [23]. A 3.36 g/cm^3 has been considered for ScSi layers. For Ar impurities in silicon layers, the increase of density due to Ar content has been taken into account. Due to the lack of scattering factors for wavelengths above 41 nm, indices of Si layers with Ar impurities, indices of Sc layers with Fe and Ta impurities, and indices of ScSi could not be calculated at $\lambda = 46$ nm. Only values of peak reflectance at $\lambda = 40$ nm are reported in these cases.

With GIXR measurements, we have estimated that maximum interfacial roughness was about 0.6 nm (Table 2). It is well known that interfacial roughness can reduce reflectivity. However, such low roughness values induce very small decreases of reflectance for the wavelength range of interest for Sc/Si mirrors. For example simulation with 0.6 nm of roughness at each interface reduces the peak reflectance by only 3.7% at $\lambda = 40$ nm and 0.85% at $\lambda = 46$ nm.

We know that a Sc_xSi_y compound layer exists at each interface (with a maximum thickness of 2.5 nm) and that the composition of these interlayers seems to be close to the ScSi ($x = y = 1$) stoichiometry (see Sect. 3.2). Interfacial layers may induce a loss of reflectivity by reducing the index contrast between the scandium and silicon and/or by increasing absorption. In order to estimate the effect of these interlayers on the peak reflectance value, we have calculated the reflectivity of a Sc/Si multilayer with 2.5 nm of ScSi at each interface. These simulations show that the formation of ScSi

TABLE 3 Effect of multilayer imperfections on simulated peak reflectance at 40 nm and 46 nm compared to experimental values. Multilayers consist of 15 bilayers

	Peak reflectance at 40 nm	Peak reflectance at 46 nm
Experimental values	0.22 ± 0.01	0.37 ± 0.02
Perfect structure	0.380	0.574
0.1% Ta and 0.05% Fe in Sc layers	0.379	–
0.6 nm roughness at each interface	0.365	0.569
2.5 nm ScSi interlayer at both interfaces	0.349	–
4% Ar in silicon layers	0.295	–
1.8 nm Native oxide	0.255	0.395
on the top Si layer 4% Ar in silicon layers and 1.8 nm native oxide on the top Si layer	0.2183	–

between scandium and silicon decreases only the reflectivity by 8.1% at $\lambda = 40$ nm. Moreover in a previous paper [11] we have tried to stop SiSc formation with a 0.3 nm B_4C barrier layer. Adding such anti-diffusion barriers does not increase the reflectivity but on the contrary decreases it by adding an absorber material.

Impurities can also reduce the reflectivity by absorbing the incident field in the multilayer. Simulation at $\lambda = 40$ nm shows that the small quantity of tantalum and iron impurities present in the scandium layers does not significantly decrease the reflectivity of the Sc/Si multilayer. However argon impurities existing in silicon layer can reduce the reflectivity. In fact, simulation shows that a concentration of 4% in silicon layers induces a relative decrease of the Sc/Si multilayer reflectivity by about 22.2% at $\lambda = 40$ nm. Nevertheless the loss of the reflectivity due to Ar impurities is not enough to explain the experimental value of peak reflectance.

Another factor that we have not mentioned before is the native oxide of the top layer. Sc/Si multilayers are covered by a silicon layer which oxidizes at air atmosphere. In fact, the top Si layer native oxide has to be taken into account in the simulation. The calculated reflectivity decreases from 0.38 to 0.25 at $\lambda = 41$ nm and from 0.57 to 0.40 at $\lambda = 46$ nm when adding a 1.8 nm silicon oxide layer.

A simulation at $\lambda = 40$ nm with argon impurity in silicon layers and 1.8 nm thick top silicon oxide formation shows that the simulated reflectivity is in agreement with the experimental reflectivity (within experimental precision). We can conclude from these simulations that the two main factors responsible for the loss of reflectivity are argon impurities in silicon layers and the top silicon native oxide. For example, we have also plotted in Fig. 5, simulated reflectivities of the two samples calculated with 1.8 nm thick top silicon oxide. As one can see, the agreement between the experimental and calculated curves is better.

4.2 *Optimization of* Sc/Si *multilayers*

We have seen that top silicon oxide induces an important loss of reflectivity of Sc/Si multilayers. It is possible to optimize the multilayer design by taking into account the silicon oxide formation on top of the multilayer in the simulation. The idea is to find a multilayer design that minimizes the influence of the top oxide layer on the peak reflectance value.

In fact, absorption inside the top silicon oxide layer depends strongly on the electric field distribution. Usually, in an optimized multilayer, the inward and outward propagating waves interfere in such a way that the nodes (minima of the standing wave) are centered within the high absorbing layer and anti-node (maxima of the standing wave) on the lower absorbing layer [24]. If the first anti-node of the standing wave is located within the absorptive SiO_2 layer (i.e., electric field intensity is maximum) then the reflectivity is strongly reduced. So, in order to reduce the effect of silicon oxide, we have to place this layer near a node of the standing waves. A simple way has been proposed theoretically by Singh and Braat for optimization of Mo/Si multilayers with capper layer [24]. It consists of optimizing the thickness of the layer just under the capper layer. As a matter of fact, by varying this thickness, one can optimize the location of the capper layer with respect to nodes of the standing waves. We studied, both theoretically and experimentally, the effect of the last silicon layer thickness on the peak reflectance of Sc/Si multilayers. The line in Fig. 6 represents the calculated peak reflectance of the Sc/Si multilayer at $\lambda = 46$ nm as a function of the thickness of the last silicon layer. A 1.8 nm thick silicon oxide on top is taken into account in this simulation. As explained in the experimen-

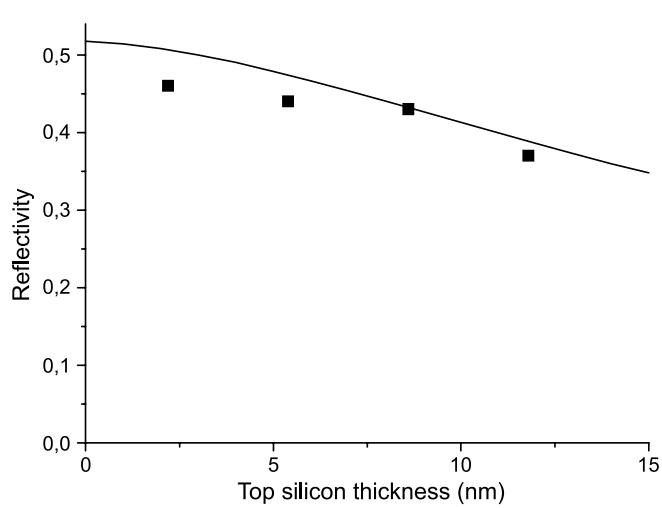


FIGURE 6 Calculated (*line*) and measured (*square*) reflectivity of Sc/Si multilayer versus top silicon layer thickness. A 1.8 nm SiO_2 top layer is used for simulation. Multilayers consist of 15 bilayers

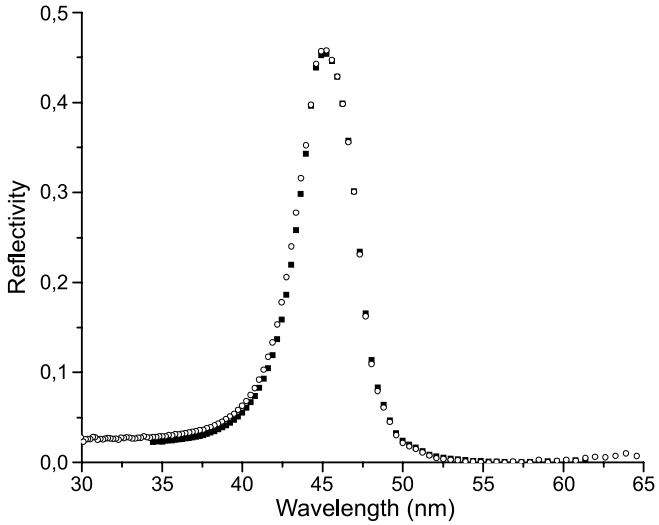


FIGURE 7 Reflectivity of Sc/Si multilayers with an optimized silicon top layer thickness (*open circle*) and boron carbide capper layer (*square*). Multilayers consist of 15 bilayers

tal part, previous multilayers have been deposited with about 12.5 nm thick silicon on top, which correspond on the calculated curve to a peak reflectance of 0.39 at $\lambda = 46$ nm. We can see on this curve that the best reflectivity is obtained when silicon thickness is zero (i.e., multilayers ended by a 1.8 nm thick silicon oxide layer on top of a scandium layer). In this case the node of the standing wave lies within the absorbing SiO_2 layer and the calculated peak reflectance reaches 0.52 at $\lambda = 46$ nm. So, theoretically, we can say that this optimization induces an important increase of reflectivity.

We have also plotted in Fig. 6 four experimental peak reflectance values. These data have been measured using a SR facility on four samples. All samples were coated with identical Sc/Si multilayers (25.6 nm period thickness) except the last silicon layer thicknesses, which ranged from 3.2 to 12.8 nm. As expected, we notice that the peak reflectance increases when the silicon thickness decreases. With a 3.2 nm thick silicon, the experimental reflectivity reaches 0.46 at $\lambda = 46$ nm. The reflectance spectrum measured on this optimized multilayer is plotted as open circles in Fig. 7. This represents a great improvement of experimental Sc/Si reflectivity as compared to the 0.37 obtained previously (see Fig. 5).

In this experimental study, we limited the silicon thickness to 3.2 nm in order to avoid oxidation of the scandium layer just below. In fact, simulations show that an optimal design would be a zero thickness silicon on top of the scandium. So we have tried to deposit a very thin capper layer directly on top of the scandium layer. In order to prevent scandium oxidation, we deposited a 2 nm thick B_4C capper layer. In this case, the node of the standing wave coincides with the B_4C/scandium interface. The experimental reflectivity versus wavelength of this multilayer with a 2 nm thick B_4C capper layer is plotted as squares in Fig. 7 and compared to the one with a top silicon layer of 3.2 nm. As one can see, these two multilayers present nearly the same reflectance spectra: the peak reflectance is 0.46 at $\lambda = 46$ nm in both cases and the shape of the curves are very similar. We can conclude from this comparison that a last silicon layer thickness of 3.2 nm is a good compromise to optimize Sc/Si multilayer reflectivity.

5 Conclusion

We have performed a comparative study of theoretical and experimental performances of Sc/Si multilayers at $\lambda = 40$ nm and $\lambda = 46$ nm. Sc/Si multilayer mirrors have been deposited by magnetron sputtering and characterized by several techniques. RBS analyses of scandium and silicon thin films shows that densities of deposited materials are close to theoretical ones. Nevertheless 4% of argon impurities were detected in silicon thin films. GIXR analyses show that interfacial roughness is low (in the range of 0.2 to 0.6 nm) but that interlayers exist at both interfaces between Sc and Si with thickness of around 2 to 2.5 nm. Composition of these interlayers seems to be close to the ScSi compound.

These multilayer imperfections have been introduced in simulation in order to explain the differences observed between theoretical and experimental reflectivity at $\lambda = 40$ nm and $\lambda = 46$ nm. We found that the two main factors responsible for the loss of reflectivity are argon impurities in silicon layers and oxidation of the top silicon layer.

Sc/Si multilayer design has been optimized by varying the last silicon layer thickness. We found a good agreement between theoretical and experimental results. The optimal last silicon layer thickness corresponds to a standing wave configuration that minimizes absorption in this top layer. A peak reflectance of 0.46 at $\lambda = 46$ nm under 10° of incidence was measured on the optimized structure with 3.2 nm top silicon thickness. This represents a great improvement of reflectivity as compared to the peak reflectance of 0.37 measured on a non-optimized structure. We also showed that the use of a B_4C capper layer instead of native silicon oxide gives the same increase in performance. Another way of improving Sc/Si multilayers would be to avoid argon impurities in silicon layers. This should be done for example by using another sputtering gas with a lower absorption than argon in this spectral region.

ACKNOWLEDGEMENTS The authors would like to thanks Prof. S. Nannarone, A. Giglia and all the BEAR team at synchrotron Trieste for their assistance during synchrotron radiation measurements. This research was supported by the program "Nouveaux materiaux-fonctionnalités nouvelles" of the Centre National de la Recherche Scientifique and by the "Recherche et Technology" program of the Centre National d'Etudes Spatiales. All multilayer depositions have been carried out on the deposition machine at CEMOX (Centrale d'élaboration et de métrologie des optiques X) implemented by PRaXO (Pôle d'optique des Rayons X d'Orsay).

REFERENCES

1 J.J. Rocca et al., Phys. Rev. Lett. **74**, (1994)
2 E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, C. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, P. Agostini, Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999)
3 D.L. Windt, S.D., J.F. Seely, B. Kjornrattanawanich, E.M. Gullikson, C.C. Walton, L. Golub, E. DeLuca, in *Proceedings of SPIE in Optics for EUV, X-ray, and Gamma-Ray Astronomy*, ed. by O. Citterio, S.L. O'Dell, vol. 5168 (SPIE, Bellingham, WA, 2003), pp. 1–11
4 Y.A. Uspenskii, S.V. Antonov, V.Y. Fedotov, A.V. Vinogradov, in *Proceedings of SPIE in Soft X-Ray Lasers and Applications II*, ed. by J.J. Rocca, L.B. Da Silva, vol. 3156 (SPIE, Bellingham, WA, 1997) p. 288

5 Y.A. Upspenskii, V.E. Levashov, A.V. Vinogradov, A.I. Fedorenko, V.V. Kondratenko, Y.P. Pershin, E.N. Zubarev, S. Mrowka, F. Schäfers, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **448**, 147 (2000)
6 A.V. Vinogradov, Y.P. Pershin, E.N. Zubarev, D.L. Voronov, A.V. Pen'kov, V.V. Kondratenko, Y.A. Uspenskii, I.A. Artioukov, J.F. Seely, in *Proceedings of SPIE in Soft X-Ray Lasers and Applications IV*, ed. by E.E. Fill, J.G. Rocca (SPIE, Bellingham, WA, 2001)
7 A.I. Fedorenko, Y.P. Pershin, O.V. Poltseva, A.G. Ponomarenko, V.S. Sevryukova, D.L. Voronov, E.N. Zubarev, J. X-ray Sci. Technol. **9**, 35 (2001)
8 A.F. Jankowski, C.K. Saw, C.C. Walton, J.P. Hayes, J. Nilsen, Thin Solid Films **469–470**, 372 (2004)
9 S. Yulin, F. Schafers, T. Feigl, N. Kaiser, in *Proceedings of SPIE in Mirror Technology for X-Ray, EUV Lithography, Laser, and Other Applications*, ed. by A.M. Khounsary, U. Dinger, K. Ota (SPIE, Bellingham, WA, 2004), vol. 5193, p. 155
10 M. Grisham, G. Vaschenko, C.S. Menoni, J.J. Rocca, Y.P. Pershyn, E.N. Zubarev, D.L. Voronov, V.A. Sevryukova, V.V. Kondratenko, A.V. Vinogradov, I.A. Artioikov, Opt. Lett. **29**, 620 (2004)
11 J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, M.F. Ravet, F. Bridou, A. Jerome, A. Giglia, S. Nannarone, in *Proceedings SPIE Advances in Optical Thin Films II*, ed. by C. Amra, N. Kaiser, H.A. Macleod (SPIE, Bellingham, WA, 2005), vol. 5963, p. 270
12 B.L. Henkee et al., Data Nucl. Data Tables **54**, (1993)
13 N. Kaiser, S. Yulin, T. Feigl, H. Bernitzki, H. Lauth, in *Proceedings of SPIE in Advances in Optical Thin Film*, ed. by C. Amra, N. Kaiser, H.A. Macleod (SPIE, Bellingham, WA, 2004), vol. 5250, p. 109
14 Y.A. Uspenskii, J.F. Seely, N.L. Popov, A.V. Vinogradov, Y.P. Pershin, V.V. Kondratenko, J. Opt. Soc. Am. A **21**, 298 (2004)
15 F. Bridou, B. Pardo, J. Opt. **21**, 183 (1990)
16 F. Bridou, J. Gautier, F. Delmotte, M.F. Ravet, O. Durand, M. Modreanu, Surf. Coat. Technol. **189**
17 F. Bridou, J. Gautier, F. Delmotte, M.F. Ravet, O. Durand, M. Modreanu, Appl. Surf. Sci. **253**, 12 (2006)
18 L. Pasquali, A. DeLuisa, S. Nannarone, in *Proceedings of SRI 13 Conference*, San Francisco (2003), vol. 705, p. 1142
19 H. Maury, P. Jonnard, J.-M. André, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, F. Delmotte, M.-F. Ravet, A. Jérome, P. Holliger, Thin Solid Films **514**, 278 (2006)
20 D.L. Windt, Comput. Phys. **12**, 360 (1998)
21 Center for X-Ray Optics, http//www-cxro.lbl.gov (cited 2006)
22 E.D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, New York, 1985)
23 A.I. Erko, V.V. Aristov, B. Vidal, *Diffraction X-ray Optics*, chapt. 1 (Institut of Physics, 1996)
24 E. Spiller, *Soft X-ray Optics* (SPIE, Bellingham, Washington, 1994), chapt. 8
25 M. Singh, J.M. Braat, Opt. Lett. **26**, 259 (2001)

Experimental study of Cr/Sc multilayer mirrors for the nitrogen K_α-emission line

Aurélie Hardouin
Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, CNRS, Université Paris-Sud, Campus Polytechnique, RD128, 91127 Palaiseau cedex, France and Xenocs SA, 19 rue François Blumet, 38360 Sassenage, France

Franck Delmotte,[a] Marie Françoise Ravet, Françoise Bridou, Arnaud Jerome, and Françoise Varniere
Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, CNRS, Université Paris-Sud, Campus Polytechnique, RD128, 91127 Palaiseau cedex, France

Claude Montcalm and Sébastien Hedacq
Xenocs SA, 19 rue François Blumet, 38360 Sassenage, France

Eric Gullikson
Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720

Pascal Aubert
Laboratoire Multicouches Nanométriques, Université d'Evry Val d'Essonne, Bâtiment Maupertuis, rue du Pere Jarlan-91025 Evry cedex, France

(Received 2 November 2007; accepted 12 February 2008; published 26 March 2008)

The authors present an experimental study of Cr/Sc multilayer mirrors optimized for the detection of the nitrogen K_α-emission line ($\lambda = 3.16$ nm) at a grazing incidence around 23°, for electron probe microanalysis applications. The multilayers were deposited onto silicon substrates using a dc magnetron sputtering system. They were characterized with grazing incidence copper K_α x-ray reflectometry and atomic force microscopy, as well as with at-wavelength reflectometry using synchrotron radiation. These various characterization methods pointed out that the interfacial roughness of these multilayers increases drastically with the number of bilayers. Growth parameters were then optimized, and it is shown that the structure and reflectivity of such multilayers can be considerably improved by optimizing the sputter gas pressure during the deposition process. Reflectivity higher than 37% were measured at 22.3° grazing angle for the nitrogen K_α-emission line. © *2008 American Vacuum Society.* [DOI: 10.1116/1.2891248]

I. INTRODUCTION

X-ray multilayer mirrors for the extreme-ultraviolet (EUV) and short x-ray wavelength range has attracted much interest in recent years. They are useful in many applications such as x-ray microscopy, EUV lithography, EUV solar imaging, x-ray astronomy, and x-ray photoemission spectroscopy.[1,2] Multilayers optimized for the 2–7 nm wavelength range find applications in material sciences, in particular, for the detection of certain light elements via x-ray fluorescence and electron probe microanalysis techniques,[3] such as oxygen (K_α-emission line at 524.9 eV, $\lambda = 2.36$ nm), nitrogen (K_α-emission line at 392.4 eV, $\lambda = 3.16$ nm), carbon (K_α-emission line at 277 eV, $\lambda = 4.48$ nm), and boron (K_α-emission line at 183.3 eV, $\lambda = 6.76$ nm). Natural crystals are commonly used for detection of heavier elements fluorescing at shorter wavelengths, but for this longer wavelength range they are limited because of their fixed lattice spacings and their low reflectivities. The great advantage of multilayer mirrors is that their period thickness, sometime called d spacing, can be controlled to fulfill Bragg's equation, which is not possible with natural crystals. Moreover, high reflectivities can be achieved with multilayers by choosing the suited material combination. A multilayer made of the Cr/Sc combination present a theoretical reflectivity very high for the nitrogen K_α-emission line because of the good optical contrast between these two materials in this wavelength region.[4] Nevertheless, fabricating x-ray multilayer mirrors with high reflectance in this wavelength region is very difficult because of the small layer thicknesses that must be deposited without imperfections. The smaller the wavelength, the thinner the layers are, and the more the reflectivity of such multilayer is influenced by interface roughness, interdiffusion, and fluctuation of the layer thicknesses.[5,6]

In most of previous studies on Cr/Sc multilayer mirrors, multilayers were designed for normal incidence around 3 nm wavelength.[5,7,8] Thus, the d spacing of such multilayers is around 1.6 nm. However, non-normal x-ray incidence optics are required as collection optics for electron probe microanalysis techniques in order to increase the collected flux. This work deals with Cr/Sc multilayers with higher d spacing (around 4 nm) designed for grazing incidence angle of 23°, also around 3 nm wavelength. Results obtained with near-normal incidence Cr/Sc multilayers cannot be extrapolated to more grazing angles, because of the thicknesses

[a]Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: franck.delmotte@institutoptique.fr

which are much greater for grazing angles. Consequently, the Cr and Sc microstructures are different in such multilayers compared with small *d*-spacing multilayers. It has been previously shown that Cr and Sc layers are crystalline in the case of 3.2 nm *d*-spacing multilayers, whereas smaller *d*-spacing multilayers are amorphous.[9,10] This leads to rougher interfaces when layers are crystalline. Few results have already been reported in litterature concerning the reflectivity of Cr/Sc multilayers designed for grazing angle in the 20°–30° range. Ohchi *et al.* have reported a measured reflectivity of 21.7% at grazing angle of 27.5°, and studied the effect of a capper layer on such multilayers.[6] Kuhlmann *et al.* have measured a reflectivity of 29.6% at grazing angle of 30.1° and have studied the effect of bias voltage during deposition, but only for multilayers designed for near-normal incidence.[9]

Different parameters can influence the growth process and so the final properties of the multilayers. In this paper we present the optimization of a 4 nm *d*-spacing Cr/Sc multilayer structure, made by studying the effect of growth conditions. The aim is to improve the interfacial roughness σ of the multilayers, in order to improve their reflectivity. Various characterization techniques were used to guide this optimization.

II. EXPERIMENT

We deposited the Cr/Sc multilayers onto Si (100) substrates using a magnetron sputter deposition system custom fabricated by Plassys.[11] The sputtering geometry is the same as in Ref. 11. This system is equipped with four 80 $\times 200$ mm^2 rectangular sputter sources mounted at the bottom of the chamber with chimneys that limit the deposition region to the area directly above them (Fig. 1). The distance between the target and the platter is 10 cm and there is 1 mm free space between the platter and the top of the chimneys. Successive layers are deposited with a rotational translation of the substrate above each source. The thickness of each layer is controlled by the rotation velocity of the substrate above each source, with typical velocities being from 0.2°/s to 2°/s. The substrate rotates around its axis of symmetry at 50 rpm to obtain good azimutal uniformity. In the chamber a typical base pressure of $\sim 3\times 10^{-6}$ Pa is achieved with a cryogenic pump, and the deposition is performed under an argon atmosphere at a controlled pressure of 0.266 Pa. The plasma discharges are established with a dc current of 0.09 A (P=30 W) for the Cr target and 0.18 A (P=57 W) for the Sc target, respectively. Under these conditions, the deposition rates were within 0.06–0.12 nm/s.

All samples were characterized with grazing incidence copper K_α x-ray reflectometry (GIXR) at λ=0.154 nm in $\theta/2\theta$ mode. The angular resolution of the reflectometer is better than 0.005°. By fitting such experimental data, we can deduce the multilayer's periodic thickness, the thickness of the different layers, the average interfacial roughnesses σ, and the layer optical constants at 0.154 nm.[12]

Samples were also characterized by atomic force microscopy (AFM) using a Veeco D3100 system to evaluate surface roughness of the different multilayers. All measurements were performed in tapping mode (tip oscillating frequency of 300 kHz) over a scan area of 1×1 μm^2 with a resolution of 512×512 data points.

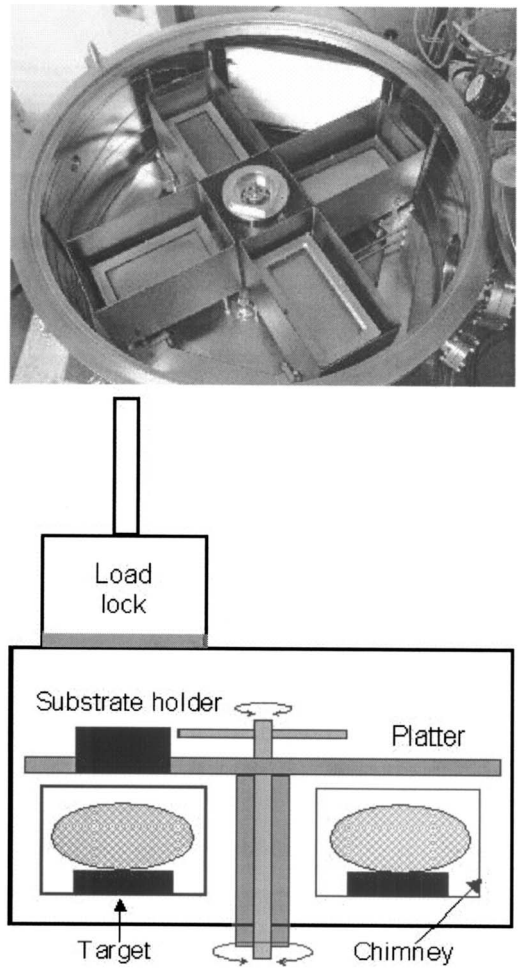


FIG. 1. Scheme of the magnetron sputtering deposition chamber.

Soft x-ray reflectivity of the samples was also measured using the Center for X-Ray Optics (CXRO) reflectometer on beamline 6.3.2 of the Advanced Light Source (ALS) in Berkeley, California.[13] Measurements were carried out in 80%-*S* (perpendicular) polarization. The optical layout of the beamline can be found in Ref. 14. For each sample, a first measurement in $\theta/2\theta$ mode at 3.16 nm wavelength was performed in order to determine the optimal angle of each multilayer. Then a wavelength scan was measured at this optimal angle. In this paper we report only the wavelength scan measurements.

All reflectivity calculations were made using the IMD software.[15] From theoretical simulations, we determined that the optimum Cr/Sc multilayer structure to achieve maximal reflectivity at grazing angle of 23° at the nitrogen K_α-emission line (λ=3.16 nm) consisted of the multilayer with a *d* spacing of 4.02 nm, Cr and Sc thicknesses of 1.49 and 2.53 nm, respectively, and at least 100 bilayers in order to get 99% of the maximum theoretical reflectivity. All mul-

TABLE I. Overview of the Cr/Sc multilayers. d represents the d spacing of the multilayer, N the number of bilayers, p the pressure of argon during the deposition process, R_0 the theoretical reflectivity of the multilayer assuming a perfect structure, R the measured reflectivity of the multilayer, and σ the effective average interfacial roughness.

Sample	d (nm)	N	p (Pa)	R_0 (%)	R (%)	R/R_0	σ (nm)
A	3.89	27	0.233	30.25	22.40	0.74	0.6
B	3.88	60	0.233	45.44	12.80	0.28	1.4
C	3.92	120	0.233	49.34	2.10	0.04	···
D	4.05	60	0.133	46.67	33.75	0.72	0.5
E	4.16	60	0.093	47.34	37.36	0.79	0.45

tilayers described in this study were deposited with these target layer thicknesses. All stacks deposited in this study begin with a Sc layer on the Si substrate and finish by a Cr top layer.

III. RESULTS AND DISCUSSION

A. Study of multilayer number of bilayers *N*

To obtain the highest reflectivity, it is important to choose an apropriate number of bilayers N. In general, reflectivity increases with N, but it reaches a maximum value from a given number of bilayers and becomes unchanged. In fact, the absorption of materials in the soft x-ray region limits the penetration depth of x rays in the multilayer. Theoretically, for a Cr/Sc multilayer optimized for grazing angle of 23° at $\lambda = 3.16$ nm, the best suited number of periods is around 100. Usually, in practice, reflectivity decreases for a large number of bilayers because the interface quality becomes worse.[16] The optimum number of bilayers must be determined experimentally in order to find the best compromise between number of reflecting interfaces and interface quality.

We first prepared a series of three samples (A, B, and C) where only the number of bilayers was varied and all other design parameters were maintained as constant as possible. Table I shows an overview of the deposition conditions and the corresponding results obtained for each samples.

GIXR measurements (dots on Fig. 2) show that three Bragg peaks were obtained for each sample (A, B, and C). The peaks from each measured curve are aligned relatively well, indicating a d spacing similar for each multilayer, and simple analyses give values close to the targeted 4.02 nm to within +/−0.14 nm (Table I). The reflectivity between the total reflection and the first Bragg peak decreases with increasing the number of bilayers indicating the surface quality seems to worsen. Moreover, the intensity of the peaks is smaller for sample C with the most layers, which indicates that the average interfacial roughness σ increases also with the number of bilayers.

The GIXR measurements of samples A, B, and C were fitted using the IMD software.[15] All bilayers are assumed to be identical in the fitting. The effective average interfacial roughness σ (Table I) is the average between Sc/Cr and Cr/Sc roughnesses deduced from the fitting. Fitted curves are also plotted on Fig. 2 (lines). For sample A, consisting of 27 bilayers, experimental data were fitted by using a constant 0.6 nm interface roughness. For sample B, however, we were not able to fit measured data by using a single periodic multilayer. In order to perform this fit we postulated that the multilayer stack quality evolved during the deposition process. Two periodic structures of 30 bilayers each with different values of interfacial roughness were required. The bottom structure of this sample (the first 30 bilayers on the substrate) was fixed and corresponds to the structure fitted for sample A. The top structure (outermost 30 bilayers) has been optimized in order to fit measured data. The interfacial roughness σ of sample B reported in Table I (1.4 nm) is the one of the top structure. For sample C, we were not able to use the same model as for sample B, so we do not show any value of average interfacial roughness in Table I. In this case, we were able to obtain a reasonable fit only after substituting the last 60 periods by one layer composed of a mix of Cr and Sc. This clearly indicates that the average interfacial roughness σ of sample C is larger than that of samples A (0.6 nm) and B (1.4 nm).

Figure 3 shows the AFM 1×1 μm^2 images for samples A, B, and C, together with their corresponding root mean square (rms) surface roughness. Results show that the surface roughness of the multilayer increases with the number of bilayers. The surface roughness of a multilayer is representative of its cumulated roughness, which results from an increase of interfacial roughness during the growth process.

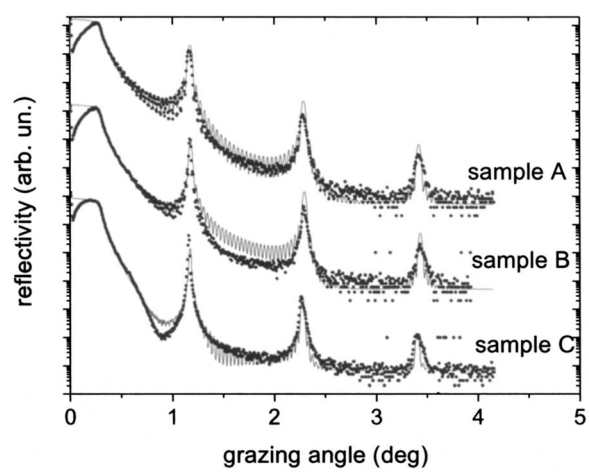


FIG. 2. GIXR measurements (dots) and fitting results (lines) of samples A, B, and C.

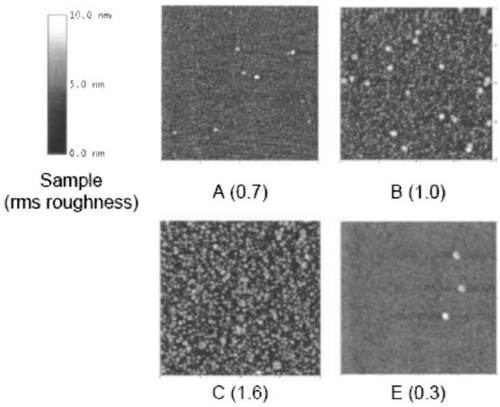


FIG. 3. 1×1 μm^2 AFM images of Cr/Sc multilayers A, B, C, and E, with the corresponding surface roughness.

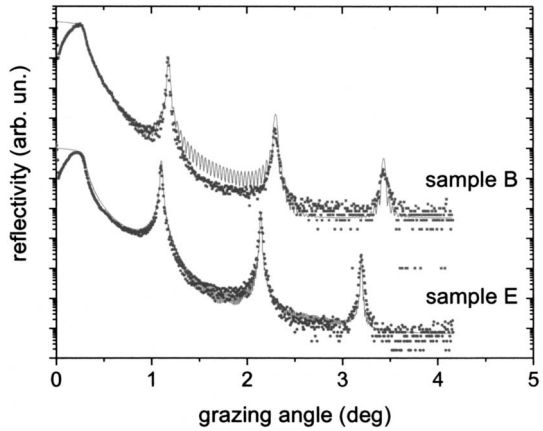


FIG. 5. GIXR measurements (dots) and fitting results (lines) of samples B and E.

Moreover, AFM probes only high spatial frequencies whereas GIXR measurements probes also lower spatial frequencies. This should explain the difference between roughness values given by AFM measurements and the effective average interfacial roughnesses deduced from GIXR measurements. Nevertheless, both techniques show a similar behavior of the roughness by increasing the number of bilayers.

Samples A, B, and C were also characterized by soft x-ray reflectometry, at grazing angle around 23° at the nitrogen K_α-emission line at 3.16 nm (Fig. 4). A peak reflectivity R of 22.4% was reached for sample A (27 bilayers), while increasing the number of bilayers lead to a reflectivity of 12.8% for sample B (60 bilayers), and 2.1% for sample C (120 bilayers). Theoretical reflectivities R_0 of the multilayers assuming a perfect structure (no interfacial roughness) are listed in Table I. To estimate multilayer quality, we can compare the measured reflectivity with the theoretical one which corresponds to the R/R_0 values listed in Table I. These R/R_0 ratios obtained for samples A, B, and C are 0.74, 0.28, and 0.04, respectively. All these results show the dramatic loss of reflectivity of the multilayers when the number of bilayers N increases, due to the decreasing interface quality.

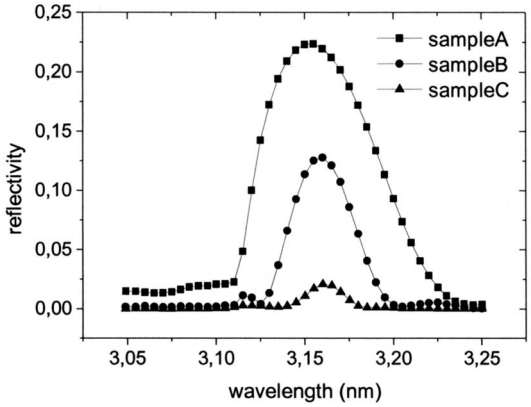


FIG. 4. Measured soft x-ray reflectivity of the Cr/Sc multilayers A (squares), B (dots), and C (triangles) around the nitrogen K_α-emission line at grazing angles of 21.7°, 23.9°, and 23.4°, respectively.

B. Optimization of multilayer structure with the sputter gas pressure

Here, we present the optimization of the Cr/Sc multilayer structure by studing the influence of argon pressure p during the deposition process. We deposited different samples by variing the process argon pressure p from 0.233 to 0.093 Pa (samples B, D, and E). For all these samples, the number of bilayers was 60.

The GIXR measurements (dots on Fig. 5) show that three Bragg peaks were obtained for samples B and E, revealing the good periodic structure of the multilayers, and allow one to determine their d spacings, listed in Table I. By decreasing the argon pressure p during the deposition process, the reflectivity between the total reflection and the first Bragg peak decreases more slowly, indicating that the surface quality seems to be improved. Moreover, the intensity of Bragg peaks is higher for sample E deposited at the lowest pressure process ($p=0.093$ Pa) compared to the initial process ($p=0.266$ Pa), which means that the periodic structure of the sample E is better than for sample B. This is confirmed by the fit made to the measurements, and from which interfacial roughnesses σ of 0.5 and 0.45 nm were obtained from samples D and E, respectively (Table I). To fit the GIXR measurement of sample B, two periodic structures with different values of interfacial roughness were required, whereas only one periodic structure was needed to fit the GIXR measurement of sample E, indicating that the multilayer stack of sample E is not degradated even with 60 bilayers. These results can be compared to results reported in litterature by Kuhlmann *et al.*, where they have determined from simulations of measured reflectivity curve at grazing angle of 30.1° an interface width of 0.48 nm for a Cr/Sc multilayer of d spacing of 3.18 nm, containing 150 bilayers.[9]

Figure 3 shows the AFM 1×1 μm^2 images for samples B and E, with their corresponding rms surface roughness. These results, in good agreement with the GIXR results, show again that the surface roughness of the multilayer decreases by decreasing the argon pressure p during the deposition process, for a constant number of bilayers N. There-

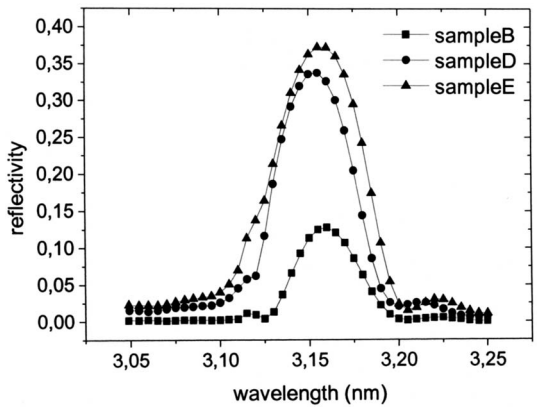


FIG. 6. Measured soft x-ray reflectivity of the Cr/Sc multilayers B (squares), D (dots), and E (triangles) around the nitrogen K_α-emission line at grazing angles of 23.9°, 22.7°, and 22.3°, respectively.

fore, the cumulated roughness of the Cr/Sc multilayers was clearly reduced by decreasing the process pressure.

These samples were also characterized by soft x-ray reflectometry, at grazing angle closed to 23° around the nitrogen K_α-emission line at 3.16 nm (Fig. 6). A peak reflectivity R of 12.8% at 3.16 nm was measured for sample B deposited with an argon pressure p of 0.266 Pa. Increasingly higher reflectivities of 33.7% and 37.3% were obtained for samples D and E, respectively, when decreasing the process pressure to 0.133 Pa and then to 0.093 Pa. The R/R_0 ratios (Table I) obtained for samples B, D, and E are 0.28, 0.72, and 0.79, respectively. These results can be compared to the one reported by Kuhlmann *et al.*, where they obtained a R/R_0 ratio of 0.59 for a Cr/Sc multilayer designed for grazing angle of 30°.[9] These results highlight the large improvement of the quality of the periodic structure of the Cr/Sc multilayers, particularly the improvement of their cumulated roughness by decreasing the operating argon pressure.

By decreasing the sputtering gas pressure, the mean free path of the sputtered particles increases. The energy of these particles arriving at the surface of the substrate increases too, which enhances their surface mobility. It has previously been shown that increasing the surface mobility of the incident particles leads to reduce the cumulated roughness and to increase the density of the layers.[7] Moreover, Schäfers *et al.* have shown that decreasing the Ar pressure during the deposition process resulted in a more stable discharge and reduced the impurities.[8]

IV. CONCLUSION

We demonstrated that the soft x-ray reflectivity of magnetron-sputtered Cr/Sc multilayers can be considerably improved by decreasing the sputtering gas pressure during the growth process. The copper K_α GIXR measurements as well as the AFM images show clearly the influence of the growth process over the cumulated roughness of Cr/Sc multilayers. The good soft x-ray reflectivity results obtained near 3.16 nm wavelength with the optimized process show that Cr/Sc multilayer mirrors are well suited for application in material science, for the detection of nitrogen K_α-emission lines for electron probe microanalysis.

ACKNOWLEDGMENTS

All this work was supported by ANVAR. All multilayer depositions have been carried out on the deposition machine of CEMOX (Centrale d'élaboration et de métrologie des optiques X) implemented by PRaXO (Pôle d'optique des Rayons X d'Orsay).

[1]E. Spiller, *Soft X-Ray Optics* (SPIE Optical Engineering, Bellingham, WA, 1994), p. 235.
[2]M. F. Ravet, F. Bridou, X. Song, A. Jérôme, F. Delmotte, R. Mercier, M. Bougnet, P. Bouyries, and J. P. Delaboudinière, Proc. SPIE **5250**, 99 (2003).
[3]R. Jenkins, *X-ray Fluorescence Spectroscopy*, Chemical Analysis Series Vol. 152 (Wiley, New York, 1999).
[4]F. Schäfers, H. C. Mertins, F. Schmolla, I. Packe, N. N. Salashchenko, and E. A. Shamov, Appl. Opt. **37**, 719 (1998).
[5]S. Yulin, F. Schäfers, T. Feigl, and N. Kaiser, Proc. SPIE **5193**, 172 (2004).
[6]T. Ohchi, T. Fujimoto, and I. Kojima, Anal. Sci. **17**, i159 (2001).
[7]J. Birch, F. Eriksson, G. A. Johansson, and H. M. Hertz, Vacuum **68**, 275 (2003).
[8]F. Schäfers, M. Mertin, D. Abramsohn, A. Gaupp, H. C. Mertins, and N. N. Salashchenko, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **467–468**, 349 (2001).
[9]T. Kuhlmann, S. Yulin, T. Feigl, N. Kaiser, T. Gorelik, U. Kaiser, and W. Richter, Appl. Opt. **41**, 2048 (2002).
[10]E. Majkova, Y. Chushkin, M. Jergel, S. Luby, V. Holy, I. Matko, B. Chenevier, L. Toth, T. Hatano, and M. Yamamoto, Thin Solid Films **497**, 115 (2006).
[11]J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, F. Bridou, M.-F. Ravet, and A. Jérôme, Appl. Opt. **44**, 384 (1998).
[12]F. Bridou and B. Pardo, J. Opt. **21**, 183 (1990).
[13]See http://www.cxro.lbl.gov/als6.3.2/ for a description of beamline and reflectometer.
[14]J. H. Underwood, E. M. Gullikson, M. Koike, P. J. Batson, P. E. Denham, K. D. Franck, R. E. Tackaberry, and W. F. Steele, Rev. Sci. Instrum. **67**, 3372 (1996).
[15]D. L. Windt, Comput. Phys. **12**, 360 (1998).
[16]D. G. Stearns, D. P. Gaines, D. W. Sweeney, and E. M. Gullikson, J. Appl. Phys. **34**, 1003 (1998).

Appl Phys A (2009) 95: 401–408
DOI 10.1007/s00339-009-5082-9

Applied Physics A
Materials Science & Processing

Design and performance of two-channel EUV multilayer mirrors with enhanced spectral selectivity

Christophe Hecquet · Franck Delmotte · Marie-Françoise Ravet-Krill · Sébastien de Rossi · Arnaud Jérome · Françoise Bridou · Françoise Varnière · Evgueni Meltchakov · Frédéric Auchère · Angelo Giglia · Nicola Mahne · Stefano Nanaronne

Received: 26 September 2008 / Accepted: 18 December 2008 / Published online: 31 January 2009
© Springer-Verlag 2009

Abstract In this paper, we present a study on two-channel multilayer mirrors which can operate at two wavelengths in Extreme Ultraviolet (EUV) spectral range. We propose a new method to design two-channel EUV multilayer mirrors with enhanced spectral selectivity. The mirror structure is a stack of two periodic multilayers separated by a buffer layer. We have defined the main parameters which allow adjustment of the distance between different order Bragg's peak and of wavelength positions of reflectivity minima. Two mirrors have been designed and deposited for solar EUV telescope applications by using this method. The first mirror reflects Fe IX–X line (17.1 nm) and Fe XVI (33.5 nm) lines with attenuation of the He II line (30.4 nm). The second mirror reflects Fe IX–X and He II lines with attenuation of Fe XV (28.4 nm) and Fe XVI lines. Measurements with synchrotron radiation source confirm that, in both cases, for these mirrors, we are able to adjust reflectivity maxima (Bragg peak position) and minima. Such multilayers offer new possibilities for compact design of multi-wavelength EUV telescopes and/or for high spectral selectivity.

PACS 42.79.Bh · 42.15.Eq · 78.67.Pt · 96.60.Tf · 42.79.Ci

C. Hecquet (✉) · F. Delmotte · M.-F. Ravet-Krill · S. de Rossi · A. Jérome · F. Bridou · F. Varnière · E. Meltchakov
Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique, CNRS, Univ. Paris-Sud, Campus Polytechnique, RD 128, 91127 Palaiseau Cedex, France
e-mail: christophe.hecquet@institutoptique.fr
Fax: +33-169-358807

F. Auchère
Institut d'Astrophysique Spatiale, CNRS, Univ. Paris-Sud, bât. 121, 91405 Orsay Cedex, France

A. Giglia · N. Mahne · S. Nanaronne
Laboratorio TASC-INFM-CNR, S.S. 14, km 163.5 in Area Science Park, Trieste 34012, Italy

S. Nanaronne
Dipartimento di Ingegneria dei Materiali e dell'Ambiente, Universita di Modena e Reggio Emilia, via Vignolese 905, 41100 Modena, Italy

1 Introduction

Among future solar missions, the Solar Orbiter of the European Space Agency (ESA) plans to study the surface of the Sun with an orbit that comes up to 0.2 astronomic units. The constraints imposed upon the instruments by the mission profile are very severe. It is necessary to design EUV instrumentation with high reflectivity and good spectral selectivity while minimizing the mass, the volume, and the heat input. In this context, multilayer mirrors able to select two emission lines with high rejection of unwanted lines provide a means to reduce the mass of the payload and to minimize the area of the entrance aperture in the heat shield. Indeed, instead of using one aperture par wavelength, as it is traditionally the case on EUV telescopes like EIT/SOHO [1], a single aperture and thus a single set of optics can be used for two wavelengths. More generally, the principles applied to two-channel mirrors can be fruitfully extended to other EUV-Soft X applications including discrete lines sources—e.g., High Harmonic Generation (HHG)—or particular optical elements for synchrotron or Free-Electron Laser (FEL) sources. In a previous paper [2], we have shown that a superposition of two periodic multilayers should provide dual reflection by using computer optimization with a merit function. A three-component multilayer mirror [B_4C/Mo/a-Si]

was used as nominal structure. This structure features an increase of reflectivity in the spectral range 20–40 nm compared to an [Mo/a-Si] multilayer and can provide a high reflectivity in two consecutive Bragg peak orders. Moreover, such coatings have already been qualified for space applications in thermal cycling and wet atmosphere [3] and deposited on the optics of the HECOR coronagraph onboard the Herschel sounding rocket mission [4]. In this paper we study a new structure by adding a buffer layer between the two multilayers and propose a method to design two-channel mirrors with high selectivity. In Sect. 2 we describe the context of two-channel multilayer mirrors for astrophysics applications. In Sect. 3 we present the two-channel multilayer mirror structure and describe the method used for optimization. Finally, in Sect. 4 both simulation and experimental results of EUV reflectivity are presented in the case of two mirrors specifically designed for solar telescope application.

2 Context

Our study is focused on solar emission lines in the wavelength range from 12.4 nm (Si L_α absorption edge) to 40 nm. At these wavelengths, the spectrum of the Sun is mostly composed of discrete lines. Each emission line is linked to the temperature of the plasma by the ionization equilibrium, for example, Fe XX–XXIII at $\lambda = 13.3$ nm (flares 1.6×10^7 K), Fe X at $\lambda = 17.5$ nm (corona 8×10^5 K), Fe XII at $\lambda = 19.5$ nm (corona 1.5×10^6 K), He II at $\lambda = 30.4$ nm (chromosphere, transition region 5×10^4 K), and Fe XVI at $\lambda = 33.5$ nm (active regions 2.5×10^6 K). Table 1 resumes the main lines of interest in this spectral range from CHIANTI atomic database [5]. The goal of a two-channel mirror is to select two complementary emission lines of two different ionized states, i.e., two different plasma temperatures of corona events. From Bragg's law (equation (1)), one can use different reflection orders k_i in order to reflect different wavelengths λ_i with a periodic multilayer mirror. In this equation, θ is the grazing angle, $\delta(\lambda)$ is related to the effective optical index $\tilde{n}(\lambda)$ [6] of the multilayer (equation (2)):

$$\lambda = \frac{2d}{k}\sin(\theta)\sqrt{1 - \frac{2\delta(\lambda)}{\sin(\theta)^2}} \tag{1}$$

with

$$\delta(\lambda) = 1 - \tilde{n}(\lambda) + \imath\beta(\lambda) \tag{2}$$

In the following, for dual channel multilayer mirror applications, the two wavelengths λ_a and λ_b are defined, where λ_a is greater than λ_b, with associated Bragg's orders k_a and k_b, where k_a is smaller than k_b. For a periodic multilayer, the spectral distance between each reflected peaks is set by the Bragg's law. Due to the fact that $\delta(\lambda_a)$ is generally smaller than $\delta(\lambda_b)$, the ratio λ_a/λ_b has to be somewhat smaller than the ratio k_b/k_a, as shown in the following equation:

$$\frac{\lambda_a}{\lambda_b} = \frac{k_b}{k_a}\sqrt{\frac{\sin(\theta)^2 - 2\delta(\lambda_a)}{\sin(\theta)^2 - 2\delta(\lambda_b)}} \tag{3}$$

Table 2 shows the different natural wavelength couples (normal font) which can be used for solar observations. Other combinations will be possible (italic font) if the distance between peaks is slightly tuned. The choice of the channel's wavelengths is defined by coupling the spectral reflectivity of the mirror and the capacity to isolate the channel with spectral transmission of metallic filters. For a given couple of wavelengths, it is important to discriminate one channel from the other. Metallic transmission filters, with appropriate absorption edge [7–9], can be used to select one wavelength of interest or the other. Possible metallic filters to be used for each couple of wavelength are given in Table 2. Zr

Table 1 EUV wavelengths of interest for solar physics from CHIANTI atomic database

Channel (nm)	Ion line (s)	Region of solar atmosphere	Log(T) (K)
13.1	Fe_{VIII}	Transition region	5.7
13.3	$Fe_{XX–XXIII}$	Flaring regions	7.0–7.1
13.6	Fe_{XXII}	Flaring regions	7.1
17.1	Fe_{IX}	Quiet corona, upper transition region	5.9
17.5	Fe_{X}	Quiet corona, upper transition region	6.0
19.2	Fe_{XXIV}	Corona and hot flare plasma	7.2
19.5	$Fe_{XI–XII}$	Corona and hot flare plasma	6.1–6.2
25.4	Fe_{XVII}	Active regions	6.9
28.4	Fe_{XV}	Active regions	6.4
30.4	He_{II}	Chromosphere, transition region	4.9
33.5	Fe_{XVI}	Active regions	6.8

Table 2 Abacus table for the 4 firsts Bragg's order combination with different pair of wavelength of interest in astrophysics (computed for [B_4C/Mo/a-Si] structure [19])

k_a	k_b	λ_a (nm)	Nearest ion line	Metallic filter λ_a	λ_b (nm)	Ion line	Metallic filter λ_b
1	2	25.5	Fe_{XVII}	Mg + Al	13.3	$Fe_{XX-XXIII}$	Zr + Si
1	*2*	*32.4*	*He_{II}/Fe_{XVI}*	*Mg + Al or Te + Al*	*17.1*	*Fe_{IX}*	*Al*
1	*2*	*33.1*	*He_{II}/Fe_{XVI}*	*Mg + Al or Te + Al*	*17.5*	*Fe_{X}*	*Al*
2	3	19.5	Fe_{XI}	Al	13.3	$Fe_{XX-XXIII}$	Zr + Si
2	*3*	*25.6*	*Fe_{XVII}*	*Mg + Al*	*17.5*	*Fe_{X}*	*Al*
2	3	28.4	Fe_{XV}	Mg + Al	19.5	Fe_{XI}	Al
2	*4*	*32.3*	*He_{II}/Fe_{XVI}*	*Mg + Al or Te + Al*	*17.1*	*Fe_{IX}*	*Al*
2	*4*	*33.0*	*He_{II}/Fe_{XVI}*	*Mg + Al or Te + Al*	*17.5*	*Fe_{X}*	*Al*
3	4	17.4	Fe_{X}	Al	13.3	$Fe_{XX-XXIII}$	Zr + Si
3	4	25.5	Fe_{XVII}	Mg + Al	19.5	Fe_{XI}	Al

mixed with a-Si is commonly used for spectral range from 12.4 nm to 18 nm, Al is commonly used for spectral range from 17 nm to 40 nm, Mg capped with Al is commonly used for spectral range from 25 nm to 40 nm, and Te capped with Al should be used for spectral range from 31 nm to 40 nm. When the two emission lines match two Bragg's orders, one can design a two-channel mirror by choosing an appropriate periodic multilayer. For example, we have designed and deposited a multilayer mirror with a second-order Bragg peak at 19.5 nm and a third-order one at 13.3 nm. This concept of EUV dual wavelength operation with natural Bragg peak position has also been used in the case of multilayer-coated diffraction gratings [10]. If the two emission lines do not match exactly Bragg's peak and/or if spectral selectivity is critical, we have to define a more complex multilayer structure in order to tune the reflected peak positions and/or to introduce the minima of reflectivity. Another challenge is to discriminate emission lines close each in wavelength with respect to a typical multilayer bandwidth, like He II at 30.4 nm from the transition region and Fe XVI at 28.4 nm or Fe XV at 33.5 nm from the active-region corona. In order to increase the spectral selectivity, it is interesting to introduce attenuation on unwanted wavelengths, i.e., minima of reflectivity.

3 Design

3.1 General description

We consider here a structure composed of superposition of two periodic multilayers as shown on Fig. 1. This structure is similar to the one optimized in our previous paper [2] excluding that we add a buffer layer between the two multilayers, ML1 and ML2, in order to adjust the modulation contrast and peak positions. Periodic multilayers with two or more different materials per period have been widely studied in the range 13 nm to 40 nm. Best performances have been

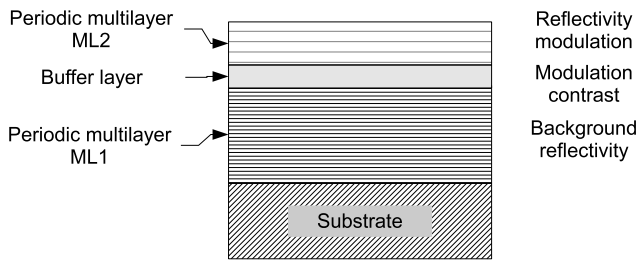


Fig. 1 Multilayer stack definition for two-channel mirrors

Table 3 Reference for the optical constants of used material with associated density

Material	σ (g/cm^3)	Ref.
B_4C	2.52	[21]
Mg	1.74	[22]
Mo	10.2	[23]
Si	2.329	[22]
a-Si	2.189	[22]
a-SiC	3.112	[21, 22]

reported with Mo/Si-type multilayers around 13 nm, but other structures have been proposed for higher wavelengths: [Mo/a-Si] [1, 11–16], [a-SiC/Mg] [15, 17, 18], [B_4C/Mo/a-Si] [3, 19, 20]. We have optimized the reflectivity of the three mentioned above structures in the wavelength range 10–40 nm. At each wavelength multilayer parameters where chosen to maximize the reflectivity at the first Bragg's order. Simulations are done for structures of 50 periods on silicon substrate at normal incidence in absence of roughness. The reference used for the optical constants of material used for computation are presented in Table 3. The maximum peak reflectivity is plotted as function of wavelength on Fig. 2a. The full width at half maximum (FWHM) has also been calculated in each case and is plotted on Fig. 2b. The peak reflectivity of [B_4C/Mo/a-Si] structure is always equal or

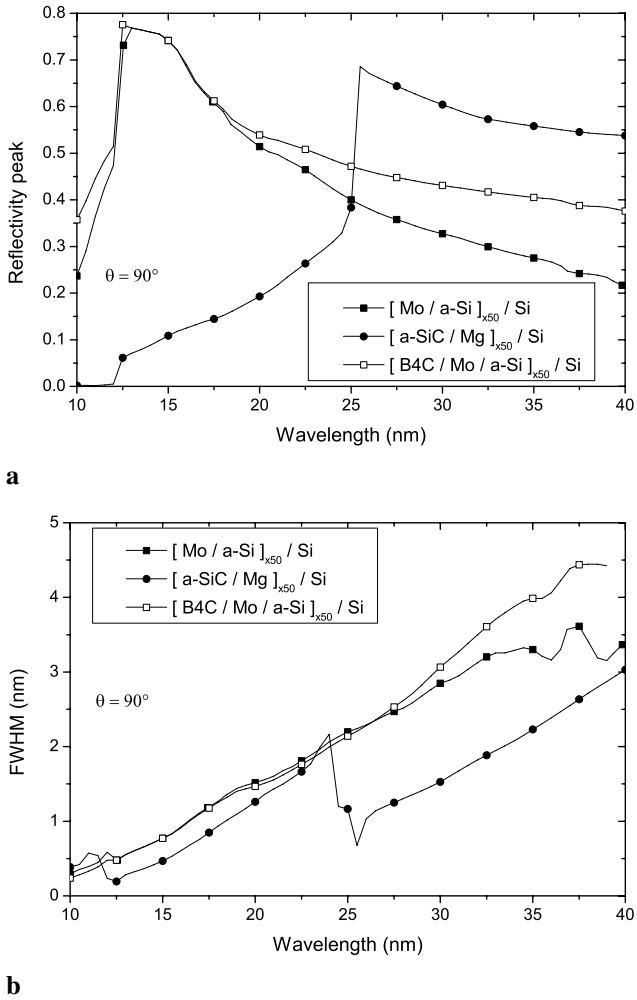


Fig. 2 Optimization in reflectivity for three common structures on the first Bragg's order at each wavelength between 10 nm and 40 nm for 50 periods on Silicon substrate with 90° grazing angle are computed in reflectivity with the following performance (**a**) maximum peak reflectivity and (**b**) FWHM

greater than the [Mo/a-Si] one. We can also notice that the FWHM of both structures are quite similar up to 30 nm, beyond this value [B_4C/Mo/a-Si] FWHM of the reflectivity peak is slightly broader than the [Mo/a-Si] one. The [a-SiC/Mg] structure presents interesting reflectivity above 25 nm (Mg L_α absorption edge) but low reflectivity below this wavelength. Further more, its FWHM is much lower than the [B_4C/Mo/a-Si] one for wavelengths above 25 nm. In case of a dual channel mirror, the choice of ML1 structure is driven by the best reflectivity available at both wavelengths (λ_a and λ_b). From Fig. 2a we can conclude that the [B_4C/Mo/a-Si] structure is the most appropriate because it presents a high reflectivity on the whole spectral range of interest (from the silicon absorption edge around 12 nm to 40 nm). Moreover, we have shown that such a tri-material multilayer has a broad first Bragg peak, and this will be useful to tune the first Bragg peak position. The number of periods is chosen in order to maximize the reflectivity at λ_b. Initial values of B_4C, Mo, and a-Si thicknesses are set by automatic computation using a custom made Matlab (r) code with constraints on the total period thickness [2]. A second periodic multilayer ML2 and a buffer layer are added to modulate the background reflectivity of ML1 in order to tune the reflected peak positions and/or to introduce minima of reflectivity. Distance between two reflected Bragg's peak is set by ratio k_a/k_b and slightly modified by efficient index at both wavelength (equation (3)). The distance between two peaks should be tuned on the lowest order peak which has the greatest FWHM. This modulation is produced by interference between the top surface and the top of ML1 with the efficient index of the buffer layer and of ML2. It can be described as Kiessig fringes [24] in the top structure. For practical reasons, we decided to use, for ML2, the same materials as in ML1, i.e., Mo, a-Si and/or B_4C. A previous study with automatic optimization has shown that materials with the lowest absorption at λ_a and λ_b were the best solution. In our case, this means that B_4C and a-Si are used for ML2. This multilayer begins and finishes with B_4C layer. So, the number of periods of ML2, N_{ML2}, is a half-integer. As illustrated in the following example (see Fig. 3a), the number of reflectivity minima is set by the total thickness of ML2 and of the buffer. To keep a good reflectivity around the two interesting peaks, the period thickness of ML2 is set around the value of period thickness of ML1, and the buffer's thickness is kept lower than ML2 thickness period. In these conditions, the number of reflectivity minima between two consecutive Bragg peaks is equal to the number of period N_{ML2} plus 1/2. Wavelength position of reflectivity minima is mainly set by ML2 period thickness, whereas values of reflectivity at minimum are mainly determined by thickness ratio between the materials in ML2. Finally, buffer layer thickness d_{buffer} is optimized in order to set first Bragg peak position of the whole structure at the wavelength of interest λ_a (see Fig. 3b).

3.2 Example

As an example, we consider a dual channel mirror for λ_a around 33 nm and λ_b around 17 nm. In this case, we can choose k_a equal to 1 and k_b equal to 2 (see Table 2). We have fixed the number of periods N_{ML1} at 30 in order to maximized reflectivity at λ_b. On Fig. 3a, we have plotted the theoretical reflectivity spectrum of the dual channel structure for N_{ML2} equal to 2.5 and 3.5. As expected, the number of minima between first- and second-order Bragg peaks is 3 and 4, respectively. In both cases, the ML2 material thicknesses and the buffer thickness have been optimized for reflection of 33.5 nm and attenuation of 30.4 nm. We have also plotted the reflectivity spectrum of ML1 alone for comparison. The

reflectivity loss compared to that of a simple structure optimized at one wavelength, as ML1 alone, has to be compared with gain in spectral selectivity. As shown on Fig. 3a, the rejection of unwanted lines is significantly improved with the dual channel mirrors. The first- and second-order Bragg peak position is plotted on Fig. 3b as a function of the normalized buffer thickness. We use ML2 material thicknesses optimized previously in the case N_{ML2} equal to 3.5 (Fig. 3a). The buffer thickness is normalized to ML1 period thickness ($d_{ML1} = 18.5$ nm). These results show a significant effect of the buffer thickness on the first-order Bragg peak position, whereas the second-order position is much less sensitive to this parameter. Figure 3b also shows that variation of peak position versus d_{buffer} with N_{ML2} equal to 2.5 or 3.5 is very similar. Thus, the choice of buffer thickness makes it possible to tune the distance between the 1st and 2nd Bragg order.

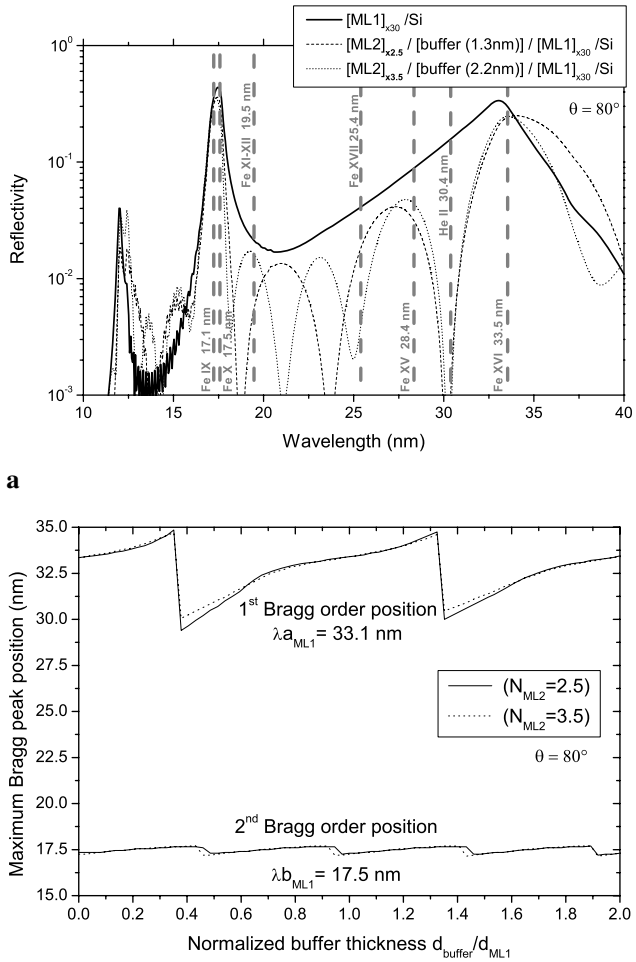


Fig. 3 (**a**) Reflectivity spectra of ML1 alone and of dual channel mirrors with 2.5 periods and 3.5 periods in ML2. (**b**) Influence of the buffer thickness normalized to ML1 period thickness on the maximum 1st and 2nd Bragg peak position

4 Results

4.1 Dual channel mirror optimization

Two structures have been designed and fabricated for two different couples of solar emission lines. The incidence angle is set at 80° from the mirror surface (mirror at near normal incidence). The first setup is defined with dual reflection at 17.4 nm and 33.5 nm (maximized) and attenuation at 30.4 nm. The second setup is defined with dual reflection at 17.1 nm (maximized) and 30.4 nm and attenuation at 28.4 nm and 33.5 nm. Their constraints and optimized performances are summarized in Table 4. For both setups, theoretical reflectivity higher than 0.35 is obtained at λ_b, and reflectivity not higher than 0.0008 is achieved for unwanted wavelengths. The reflectivity at λ_a is 0.17 for setup #2 and reaches 0.25 for setup #1. B_4C, Mo, and a-Si have been used as follow: ML1 is a [B_4C/Mo/a-Si] $\times N_{ML1}$ structure, and ML2 is a [B_4C/a-Si] $\times N_{ML2}$ structure. In both setups, the ratio λ_a/λ_b is close to 2, so λ_a will be the first Bragg's order ($k_a = 1$), and λ_b will be the second Bragg's order ($k_b = 2$). For fabrication, the B_4C layer in ML1 is divided on both sides of the Mo layer to limit interdiffusion between Mo and a-Si and thus to obtain a more stable structure [25, 26]. The B_4C thickness repartition is symmetric

Table 4 Constraints and performances of the two studied setups

	Setup #1			Setup #2		
	Constraint 1	$R_{optimized}$	$R_{measured}$	Constraint	$R_{optimized}$	$R_{measured}$
λ to reflect						
λ_b	17.1–17.5 nm	0.35	0.32 ± 0.01	17.1–17.5 nm	0.36	0.29 ± 0.01
λ_a	33.5 nm	0.25	0.19 ± 0.01	30.4 nm	0.17	0.09 ± 0.01
λ to attenuate						
	30.4 nm	7×10^{-4}	$2 \times 10^{-3} \pm 0.01$	28.4 nm	8×10^{-4}	$3 \times 10^{-3} \pm 0.01$
				33.5 nm	3×10^{-4}	$2 \times 10^{-3} \pm 0.01$

Table 5 Initial and optimized values of thicknesses and period number for the 2 studied setups

	Setup #1 Optimized	Setup #2 Optimized
ML2 period thickness (nm)	18.4	17.72
N_{ML2}	3.5	5.5
B_4C thickness (nm)	3.5	3.36
a-Si thickness (nm)	14.9	14.36
d_{buffer} a-Si thickness (nm)	2.2	14.00
ML1 period thickness (nm)	18.5	18.2
N_{ML1}	20	28
B_4C thickness (nm)	2.2	0.6
Mo thickness (nm)	3.2	3.2
B_4C thickness (nm)	0.5	0.6
a-Si thickness (nm)	12.6	13.8
Si substrate		

when λ_b is optimized (setup #2) and dissymmetric when λ_a is optimized (setup #1). In the first case, the layers are thin and act as barrier layers as opposed to the second case, where the B_4C layer on top of the Mo layer becomes thicker to increase the reflectivity at λ_a and reinforce the tri-material effect at long wavelengths. The final stack, from the substrate to the surface, starts with an ML1 structure [B_4C/Mo/B_4C/a-Si] $\times$ N_{ML1}, then with an [a-Si] buffer layer, and ends with an ML2 structure [B_4C/a-Si] $\times$ N_{ML2}. Previous descriptions give initial thickness for the final optimization which was done by simulation with the IMD code [27] to adjust minima, position and contrast, and relative reflectivity between channels as described in Sect. 3. The initial and optimized values of thicknesses and period number are listed in Table 5 for both setups.

4.2 Multilayer deposition and calibration

All samples were deposited at LCFIO in a DC-RF magnetron sputtering system which has been described in details in [19, 20]. Briefly, the magnetron sputtering machine is an industrial system from Plassys MP800S. This system is equipped with four 80 × 200 mm cathodes. The rectangular targets are mounted in the bottom of the chamber with chimneys that limit the deposition region to the area directly above them. A background pressure of 2×10^{-8} Torr is obtained with a cryogenic pump. Successive layers are deposited by scanning the substrate above the target at a distance of 10 cm. The thickness of each layer is controlled by the rotation velocity of the substrate on the target box. The typical velocity is adjusted from 0.20°/s to 2.00°/s. The substrate is rotating around its axis of symmetry at 50 rpm in order to obtain good azimuthal uniformity. The plasma discharges are established with a DC current of 0.06–0.09 A for the Mo target and a RF power of 150 W for the a-Si and B_4C targets. All calibration and final samples were characterized with Grazing Incidence copper K_α X-ray Reflectometry (GIXR) at wavelength of 0.154 nm in $\theta/2\theta$ mode. The angular resolution of the reflectometer is better than 0.005°. By fitting such experimental data [28] we can deduce the multilayer's period thickness, thickness of the different layers, and average interfacial roughness and layer optical constants at $\lambda = 0.154$ nm. The deposition rate of each material is estimated with GIXR measurements of thin film deposited on substrate. Then, ML1 and ML2 multilayer calibrations are performed independently on the Si wafer. The uncertainty obtained on the thickness period is ±0.03 nm, and the uncertainty on individual material thickness within the period is ±0.2 nm. Sample #1, corresponding to Setup #1, and sample #2, corresponding to setup #2, have been deposited on a Si (100) substrate. Setup #2 has also been deposited on a superpolished silicate glass without difference on the reflected spectrum shape.

4.3 Multilayer performances–EUV reflectivity

The EUV reflectivity of the multilayers was measured on the BEAR beamline [29] at the ELETTRA synchrotron facility (Trieste, Italy). The grazing angle was fixed to 80° for all measurements. Two gratings were used to perform measurement in the range 15 nm to 50 nm, and Al or a-Si filters were used to reject the high diffraction orders of the grating when necessary. A normal incidence monochromator grating covers the low-energy beam from 30 nm to 50 nm, and a 1200 lines/mm grazing incidence monochromator grating covers the high-energy beam from 15 nm to 31 nm. The measured reflectivity of samples #1 and #2 are reported in Figs. 4 and 5, respectively. The reflectivity of a perfect structure has been computed and plotted on both figures with no roughness, no polarization, incident angle of 80°, using optimized thicknesses from Table 5. We report in Table 4 the experimental values of reflectivity and peak positions. The shift between experiment and theory is less than 0.15 nm for both samples. The experimental reflectivity peak and attenuation positions are in good agreement with theoretical calculations for wavelengths below the first Bragg position around 30 nm. At longer wavelengths, larger differences appear between experimental and theoretical reflectivity. It may be due to a difference between the optical indices used for computation and the real ones.

For sample #1 with one constraint on attenuation at 30.4 nm, experimental results are similar to the theoretical curve (Fig. 4). The second Bragg order peak at 17.4 nm with a reflectivity of 0.32 ± 0.01 is 0.03 lower than the simulated value, and the first Bragg peak at 33.5 nm with a reflectivity

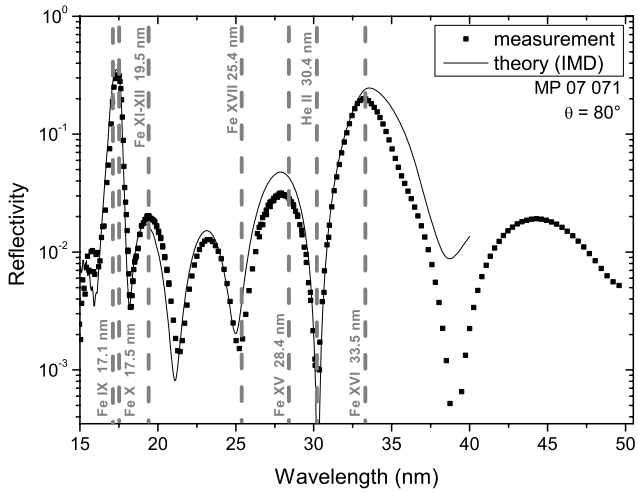


Fig. 4 Theoretical and measured reflectivity versus wavelength for two-channel mirror setup #1, $\lambda_a = 33.5$ nm, $\lambda_b = 17.4$ nm with reflectivity attenuation at 30.4 nm

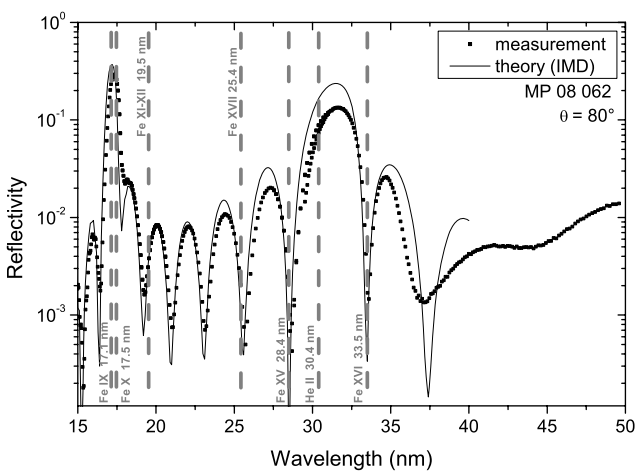


Fig. 5 Theoretical and measured reflectivity versus wavelength for two-channel mirror setup #2, $\lambda_a = 30.4$ nm, $\lambda_b = 17.4$ nm with reflectivity attenuation at 28.4 nm and 33.5 nm

of 0.19 ± 0.01 is nearly 0.06 lower than simulation. Minima values are of the same order of magnitude as theory except attenuation around 39 nm, which is lower than theory. This difference is in position and amplitude.

For sample #2 with two constraints on attenuation at 28.4 nm and 33.5 nm, experimental results are also similar to the simulated curve (Fig. 5). The second-order Bragg's peak at 17.4 nm with a reflectivity of 0.29 ± 0.01 is 0.07 lower than simulation and the first Bragg peak around 30.4 nm with a reflectivity of 0.09 ± 0.01 is 0.08 lower than simulation. Minima values are of the same order of magnitude as theory except attenuation around 37.5 nm, which is higher than theory. This difference is in position and amplitude. A high spectral rejection between the chromosphere (He II at 30.4 nm) and active region (Fe XV at 28.4 nm and Fe XVI at 33.5 nm) has been achieved in both cases. The performances of the dual channel multilayer structure deposited on the reference sample #1 have been monitored during 4 months, in the lab under dry nitrogen, in order to evaluate the temporal ageing effects. The results, not presented here, show a shift of less than 0.1 nm that is within the uncertainty margin of the repeatability EUV measurement.

5 Conclusion

A new multilayer structure has been proposed in order to design two-channel EUV mirrors with enhanced selectivity. It consists of a superposition of two periodic multilayers: a tri-material structure $[B_4C/Mo/a\text{-}Si]x\,N_{ML1}$, on which we add a buffer layer of a-Si, and then a $[B_4C/a\text{-}Si]x\,N_{ML2}$ top structure. We have identified independent parameters, which give the possibility to tune the distance between Bragg's peaks, to set minima positions and to modulate the relative reflectivity between peaks. This structure is especially interesting for discrete emission sources like the Sun or harmonic emission sources: it gives a new simple way to reflect two wavelengths and to enhance spectral purity. Two dual channel mirrors have been designed and deposited: 17.1 nm & 30.4 nm (cut off 28.4 nm and 33.5 nm) and 17.5 nm & 33.5 nm (cut off 30.4 nm). Their performances have been measured on the Trieste Synchrotron and are very close to theoretical simulations. Some discrepancies, between optimized and realized mirror, appear in amplitude for wavelengths above 25 nm and in shape for wavelengths above 35 nm. These differences may be due to interfacial roughness and differences between tabulated material optical indices and deposited material optical indices at long wavelengths. At the present time, these new structures are under environmental test at CNES with thermal cycling and wet atmosphere. Such multilayers offer new possibilities for compact design of multi-wavelengths EUV telescopes. They are proposed for the EUV imaging telescopes to be flown on board the Solar Orbiter.

Acknowledgements This work was supported by the Centre National d'Études Spatiales in the R&T program framework and Sagem Défense Sécurité. All multilayer depositions have been carried out on the deposition machine of the CEMOX (Centrale d'élaboration et de métrologie des optiques X) implemented at the Institut d'Optique by PRaXO (Pôle d'optique des Rayons X d'Orsay).

References

1. J.P. Delaboudinière, G.E. Artzner, J. Brunaud, A.H. Gabriel, J.F. Hochedez, F. Millier, X.Y. Song, B. Au, K.P. Dere, R.A. Howard, R. Kreplin, D.J. Michels, J.D. Moses, J.M. Defise, C. Jamar, P. Rochus, J.P. Chauvineau, J.P. Marioge, R.C. Catura,

J.R. Lemen, L. Shing, R.A. Stern, J.B. Gurman, W.M. Neupert, A. Maucherat, F. Clette, P. Cugnon, E.L. Dessel, Sol. Phys. **162**(1), 291–312 (1995)
2. J. Gautier, F. Delmotte, M. Ravet, A. Jérome, F. Bridou, F. Varnière, F. Auchère, Opt. Commun. **281**(11), 3032–3035 (2008)
3. C. Hecquet, M. Ravet-Krill, F. Delmotte, A. Jérome, A. Hardouin, F. Bridou, F. Varnière, M. Roulliay, F. Bourcier, J. Desmarres, V. Costes, J. Berthon, A. Rinchet, R. Geyl, Proc. SPIE **6586**(1), 65860X (2007)
4. F. Auchère, M. Ravet-Krill, J.D. Moses, F. Rouesnel, J. Moalic, D. Barbet, C. Hecquet, A. Jérome, R. Mercier, J. Leclec'h, F. Delmotte, J.S. Newmark, Proc. SPIE **6689**(1), 66890A (2007)
5. K. Dere, E. Landi, H. Mason, B.M. Fossi, P. Young, Astron. Astrophys. Suppl. Ser. **125**, 149–173 (1997)
6. E.A. Spiller, *Soft X-Ray Optics* (SPIE, Bellingham, 1994), p. 290
7. P.H. Berning, A.F. Turner, J. Opt. Soc. Am. OSA **47**(3), 230–239 (1957)
8. O.P. Rustgi, J. Opt. Soc. Am. OSA **55**(6), 630–634 (1965)
9. R.J. Schumacher, W.R. Hunter, Appl. Opt. OSA **16**(4), 904–908 (1977)
10. M.P. Kowalski, J.F. Seely, W.R. Hunter, J.C. Rife, J.T.W. Barbee, G.E. Holland, C.N. Boyer, C.M. Brown, R.G. Cruddace, Appl. Opt. OSA **32**(13), 2422–2425 (1993)
11. J. Troy, W. Barbee, S. Mrowka, M.C. Hettrick, Appl. Opt. OSA **24**(6), 883–886 (1985)
12. J. Chauvineau, J. Clotaire, G. Colas, O. Lam, J. Manneville, J. Marioge, M. Mullot, A. Raynal, G. Tissot, L. Valiergue, J. Delaboudiniere, Proc. SPIE **1546**(1), 576–586 (1992)
13. M. Ravet, F. Bridou, X. Zhang-Song, A. Jerome, F. Delmotte, R. Mercier, M. Bougnet, P. Bouyries, J. Delaboudiniere, Proc. SPIE **5250**(1), 99–108 (2004)
14. J. Wuelser, J.R. Lemen, T.D. Tarbell, C.J. Wolfson, J.C. Cannon, B.A. Carpenter, D.W. Duncan, G.S. Gradwohl, S.B. Meyer, A.S. Moore, R.L. Navarro, J.D. Pearson, G.R. Rossi, L.A. Springer, R.A. Howard, J.D. Moses, J.S. Newmark, J. Delaboudiniere, G.E. Artzner, F. Auchere, M. Bougnet, P. Bouyries, F. Bridou, J. Clotaire, G. Colas, F. Delmotte, A. Jerome, M. Lamare, R. Mercier, M. Mullot, M. Ravet, X. Song, V. Bothmer, W. Deutsch, Proc. SPIE **5171**(1), 111–122 (2004)
15. D.L. Windt, S. Donguy, J. Seely, B. Kjornrattanawanich, Appl. Opt. OSA **43**(9), 1835–1848 (2004)
16. J. Defise, J. Halain, D. Berghmans, F. Denis, E. Mazy, T. Thibert, J. Lecat, P. Rochus, B. Nicula, A.D. Groof, J. Hochedez, U. Schühle, M. Ravet, F. Delmotte, Proc. SPIE **6689**(1), 66890S (2007)
17. T. Ejima, Y. Kondo, M. Watanabe, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 376–379 (2001)
18. Y. Kondo, T. Ejima, K. Saito, T. Hatano, M. Watanabe, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **467–468**(1), 333–336 (2001)
19. J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, F. Bridou, M. Ravet, A. Jérome, Appl. Opt. OSA **44**(3), 384–390 (2005)
20. F. Delmotte, J. Gautier, M. Roulliay, M.F. Ravet, F. Bridou, A. Jérome, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **5963**(1), 59631V (2005)
21. B. Henke, E. Gullikson, J. Davis, At. Data Nucl. Data Tables **54**(2), 181–342 (1993)
22. E.M. Gullikson, P. Denham, S. Mrowka, J.H. Underwood, Phys. Rev. B Am. Phys. Soc. **49**(23), 16283–16288 (1994)
23. R. Soufli, E.M. Gullikson, Appl. Opt. OSA **37**(10), 1713–1719 (1998)
24. H. Kiessig, Ann. Phys. **402**(7), 769–788 (1931)
25. S. Bajt, J.B. Alameda, T.W. Barbee, W.M. Clift, J.A. Folta, B. Kaufmann, E.A. Spiller, Opt. Eng. **41**(8), 1797–1804 (2002)
26. H. Maury, P. Jonnard, J. André, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, F. Delmotte, M. Ravet-Krill, A. Jérome, P. Holliger, Thin Solid Films **514**(1–2), 278–286 (2006)
27. D.L. Windt, Comput. Phys. **12**(4), 360 (1998)
28. F. Bridou, B.A. Pardo, J. Opt. **21**(4), 183–191 (1990)
29. S. Nannarone, F. Borgatti, A. Deluisa, B.P. Doyle, G.C. Gazzadi, A. Giglia, P. Finetti, N. Mahne, L. Pasquali, M. Pedio, G. Selvaggi, G. Naletto, M.G. Pelizzo, G. Tondello, AIP Conf. Proc. **705**, 450–453 (2004)

Appl Phys A
DOI 10.1007/s00339-009-5445-2

Applied Physics A
Materials Science & Processing

Development of Al-based multilayer optics for EUV

E. Meltchakov · C. Hecquet · M. Roulliay · S. De Rossi · Y. Menesguen · A. Jérome · F. Bridou · F. Varniere · M.-F. Ravet-Krill · F. Delmotte

Received: 4 May 2009 / Accepted: 30 September 2009
© Springer-Verlag 2009

Abstract We report on the development of multilayer optics for the extreme ultra-violet (EUV) range. The optical performance of Al-based multilayer mirrors is discussed with regard to promising reflectivity and selectivity characteristics and the problems of the interfacial roughness for this type of multilayers. We demonstrate a possibility to reduce the average roughness by introducing additional metal layer (W or Mo) rather than depositing a buffer layer at each interface. We have prepared and tested Al/SiC, Al/W/SiC and Al/Mo/SiC multilayers of various periods for the spectral range from 15 to 40 nm, which is the range of increasing interest for high-order harmonic generation, synchrotron radiation and astrophysics. The structure of the three-component systems has been optimized in order to obtain the best reflectivity for each wavelength within the spectral range. We have shown that introduction of refractory metal in Al-based periodic stack can improve the optical performance of multilayer reflecting coatings designed for the EUV applications.

PACS 42.70.-a · 61.05.Cm · 68.35.Ct · 78.67.Pt · 81.07.-b

E. Meltchakov (✉) · C. Hecquet · S. De Rossi · Y. Menesguen · A. Jérome · F. Bridou · F. Varniere · M.-F. Ravet-Krill · F. Delmotte
Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique Graduate School, 91127 Palaiseau, France
e-mail: evgueni.meltchakov@institutoptique.fr
Fax: +33-169-358807

M. Roulliay
Laboratoire d'Interaction du rayonnement X avec la Matière (LIXAM), 91403 Orsay, France

1 Introduction

The use of multilayer reflecting coatings is practically responding to the need for normal incidence optics in the EUV range. These structures, made of a number of alternatively deposited thin layers of different materials, provide for high normal reflectance due to constructive interference of small fractions of incident light reflected by each interface in accordance with Bragg's law [1].

Remarkable technological progress of multilayer fabrication was mainly inspired by the development of a technology for projection lithography at 13.5 nm, for which Mo/Si multilayers proved to be the most appropriate coating due to high reflectivity (∼70%) and stability of optical characteristics [1, 2]. While further progress of the EUV-lithography is postponed until the problem of an efficient light source at 13.5 nm is solved, the multilayer development is expanding to longer wavelengths. In the wavelength range from 15 to 40 nm, multilayer optical elements and systems are essential for various applications, such as synchrotron radiation, free electron laser, high-order harmonics generation sources, plasma diagnostic, etc. They are also of particular interest for astrophysics, which is running an analysis of numerous emission lines of solar plasma within the EUV range. For instance, the multilayer reflecting coatings were used in a number of instruments for some recent space missions (SOHO/EIT, STEREO/SECCHI, etc.) [3, 4].

Among the reflecting multilayer coatings available for the spectral range between 15 and 40 nm, preference is often given to Mo/Si multilayers as the most technologically advanced. In principle, other material combinations would provide higher reflectance and, sometimes, a narrower bandwidth. The latter is especially important when the selection of a particular one of close emission lines is concerned. The spectral selectivity $\lambda/\Delta\lambda$, which can be attained with Mo/Si

Published online: 15 October 2009

is about 10 in this spectral range. There were reported various Si-based multilayers showing somewhat better performance in terms of reflectivity than Mo/Si. These are the structures with high absorbing material other than Mo (B_4C, C, Mo_2C, SiC, etc.) [5–7] and three-component multilayers, for instance B_4C/Mo/Si [8]. Two other groups could be constituted of Al- and Mg-based systems, as these materials are less absorbing than Si beyond their absorption edges, which are situated at 17 and 25 nm, respectively. One of the Mg-based multilayers, Mg/SiC, was reported to have been successfully produced and tested [9–11].

In the present paper, we report on the development of EUV multilayer mirrors made with aluminum. Section 2 starts from expectations and problems related to fabrication and characterization of Al-based multilayers. We will discuss the possibility to improve their optical performance via optimization of multilayer deposition process and (in Sect. 3) introduction of a third material into the multilayer structure. We will present and discuss experimental results obtained with some three-component Al-based systems designed for three wavelengths: 17.1, 19.5 and 30.4 nm, corresponding to emission lines of Fe IX-X, Fe XI-XII and He II [12].

2 Al-based multilayers

2.1 Problem of high roughness and reflectance loss

Reflectivity and bandwidth calculations predict a very promising performance for multilayers made of alternatively deposited Al and another material (Mo, Y, Nb, Zr, SiO_2, SiC, B_4C, etc....) in the range from 17 to 40 nm compared to that of Mo/Si (an example of a simulation is shown in Fig. 1). In practice, however, there is a quite limited number of published works which deal with Al-based reflecting coatings for the EUV range. It often happens that if results are not optimistic, they rarely appear in publications. In fact, from the data found in the literature on Al/Nb, Al/SiO_2, Al/Mo, Al/Y and a few others [13–17], one can deduce that there is a problem to realize multilayer mirrors having a reasonably fair performance. To our knowledge, relatively good results in terms of reflectivity and stability of optical characteristics were obtained only for the Al/Zr system [18, 19]. All other structures demonstrated significantly reduced reflectivity compared to that expected from simulations. Moreover, the multilayer reflectance degraded with time.

The most probable reason of the poor performance of the available Al-based multilayer mirrors is the formation of a rough interface between Al and adjacent material as a result of interdiffusion and/or inhomogeneous crystallization of Al. It is also known the ability of Al to form solid solutions with other materials [20]. Thus, it has to avoid using

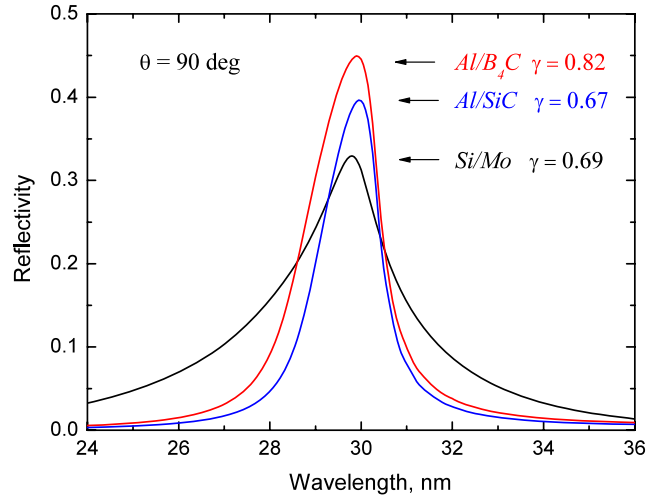


Fig. 1 Theoretical reflectivity of Al/SiC, Al/B_4C and Si/Mo multilayers at normal incidence. All spectra are calculated for the multilayer period $d = 16$ nm, number of periods $N = 50$, thickness ratio $\gamma = d_1/d$ is optimized for each multilayer, zero roughness being assumed

materials, which might have solid-state reactions with Al. Finally, the oxidation of surface layers may also contribute to the reflectivity loss.

Variation of substrate bias during the multilayer deposition was reported to sharpen the interface and improve the reflectance of Mo/Al multilayers at 18.5 nm from 28 up to 33% [21]. The influence of post-deposition thermal treatment (annealing) on the interface quality in Mo/Al multilayers was studied in [22]. A certain improvement was observed from analysis of the hard x-ray reflectivity curves, which showed additional Bragg peaks appearing after the treatment.

We believed, however, that it might be possible to obtain smoother Al layers throughout optimization of the thin film and multilayer deposition process.

2.2 Optimization of deposition process and characterization of multilayers

Films and multilayers for our study were prepared at *Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique*. A combined rf/dc magnetron sputtering system, which can accommodate up to four targets, is described elsewhere [8, 23]. We have decided to use a silicon doped (1.5%) aluminum target. The idea behind is that the presence of Si even in small proportion would disfavor crystallization of Al and, thus, provide for a smoother film growth. We have studied the influence of various parameters of the magnetron sputtering process (dc- and rf-modes and power, gas pressure, a distance between cathode and substrate) on the quality of the deposited films and multilayers. All the samples were routinely characterized by using grazing incidence x-ray (Cu k_α, $\lambda = 0.154$ nm) reflectivity (GIXR). We have deduced their structural parameters from fits to the GIXR data:

the film thickness or the multilayer period and values of average roughness. Finally, we run the process in rf-mode at a working gas (Ar) pressure of 2 mTorr. The power applied was 150 W and the substrate (Si wafer) was placed at 10 cm from the target. The optimization of the sputtering process has allowed us to grow relatively smooth Al films. We found the average roughness values of a few tens-of-nanometers-thick Al films in the order of 1 nm, which is approximately a factor two smaller than we had before with pure Al target. We kept the parameters defined for Al and proceeded to the multilayers deposition. For other targets that we used to fabricate various Al-based multilayers, the deposition parameters were also revised. Eventually, the B_4C and SiC targets were operated in rf-mode (both at 150 W). For the multilayers reported in Sect. 3, we utilized the Mo and W targets in dc-mode (0.06 and 0.07 A).

At-wavelength characterization was performed by using EUV reflectometer installed at *LIXAM* [24]. The reflectometer is equipped with a laser-plasma source based on the laser beam (YAG:Nd 2ω, $\lambda = 532$ nm, $E = 400$ mJ, $\tau = 5$ ns) interaction with a target made of copper foil. The source delivers single shots to a monochromator selecting radiation in the range from 8 to 50 nm. A low repetition rate (1 shot per second) makes it difficult to obtain a precise calibration of the intensity of incident beam and, thus, the multilayer response is measured with relatively large error bars ($\pm 5\%$). Nevertheless, the EUV reflectivity measurements at normal incidence have allowed us to make a pre-selection of samples for absolute calibration with synchrotron radiation, which has been realized later on, during an experimental run at *BEAR* beamline of *Elettra Sincrotrone Trieste* [25]. The absolute uncertainty of the peak reflectance measured at *Elettra* is less than 0.5%.

2.3 Al/SiC and Al/B_4C multilayers

For an initial study, we have selected two systems: Al/SiC and Al/B_4C with the period d in the range from 9 to 16 nm, designed according to our calculations of their reflectivity at about 17, 19 and 30 nm, which were made using the *IMD* program [26]. Refraction indices of the materials were taken from a database of optical constants integrated in the *IMD* package. The simulations predict that the peak reflectance of Al/SiC and Al/B_4C is achieved in the range of $\gamma = 0.6$–0.7 (the ratio between the individual Al layer thickness and the multilayer period). The calculated reflectivity saturates with approximately 60 bi-layers in case of a short period ($d = 9 \div 10$ nm) and with about 30 bi-layers in case of multilayers having the period $d \sim 16$ nm.

Several samples of different period numbers (from 10 to 40) and various thicknesses of individual layers were fabricated in order to study an influence of interfacial roughness as a function of the number of bi-layers and the thickness ratio on the multilayers reflectivity and selectivity. Experimental results are summarized in Table 1. The best results obtained with Al/SiC multilayers are similar to those of the Mo/Si system [4] in terms of EUV reflectivity and superior in terms of spectral selectivity. In spite of the higher theoretical reflectivity of Al/B_4C, its real performance turned out to be worse. Obviously, the roughness problem for this system is more pronounced than for Al/SiC.

We estimated the interfacial and surface roughness from GIXR and atomic force microscopy (AFM) measurements. From analysis of the GIXR data, it was found that the interfaces SiC(B_4C)-on-Al and Al-on-SiC(B_4C) are not symmetrical and can be characterized with different values of roughness. The latter interface is more problematic than the former. For the surface roughness values determined by AFM, we obtained $\sim$1.2 nm *rms* for one of the Al/SiC multilayers (25 periods of 15.5 nm) and nearly 2 nm *rms* for the Al/B_4C sample (25 periods of 15 nm).

As a matter of fact, the interfacial roughness increases with thickness of the individual Al layers. Moreover, it accumulates with the number of bi-layers. We observed that starting from a certain period number, which is still far from the saturation value, the multilayer reflectance does not increase any more but rather decreases at the expense of rapidly increasing interfacial roughness. Both Al/SiC and

Table 1 The parameters and optical properties of Al/SiC and Al/B_4C multilayers measured at 80 deg. Here, the first interface is SiC-on-Al (or B_4C-on-Al), while the second one is Al-on-SiC (or Al-on-B_4C)

Multilayer type	Al/SiC					Al/B_4C
Period d, nm	8.8	10.0	15.9	15.5	16.0	14.9
Period number	40	40	10	25	40	25
Al thickness ratio γ (d_{Al}/d)	0.61	0.64	0.66	0.68	0.72	0.72
Roughness at 1st interface, nm	0.6	0.6	0.4	1.0	1.1	1.1
Roughness at 2nd interface, nm	1.0	1.0	0.7	1.3	2.3	2.1
Reflectance peak position, nm	17.2	19.1	29.3	28.7	29.4	27.0
Reflectivity, %	37.8	28.0	18.6	22.8	8.2	11.2
Selectivity, $\lambda/\Delta\lambda$	57	36	12	22	29	24

Al/B_4C multilayers have the same feature but the latter is usually rougher. For the time being, we have decided to focus on the Al/SiC system looking for different ways to improve its optical performance.

3 Three-component Al-based structures

3.1 Reasoning and optimization

When the problem of roughness in multilayers is concerned, the addition of a thin barrier layer between two materials often helps to obtain a sharper interface as it might prevent interdiffusion and formation of intermixing zone [27–29]. Here one has the option of applying the same or even different buffer materials on both sides of one layer. The materials' selection is made according to their physico-chemical and optical properties. The influence of thin ($\sim 0.3 \div 0.5$ nm) amorphous carbon layers deposited between the metal layers on the reflectance and stability of the Al/Mo and Al/Y systems was studied more than 10 years ago [17]. To our disappointment, no significant improvement was reported on the use of barrier layers in Al-based multilayers then and later on.

On the other hand, it has been shown, both theoretically and experimentally, that a periodical structure made of three (or even four) materials can be a more efficient reflector to some extent than the classical two-material multilayer [8, 30–33]. In case of multi-component structure, the number of periods needed to attain the maximum theoretical reflectance is normally smaller than in the two-material one, because of a bigger number of interfaces contributing to the multilayer reflectivity. It is particularly important if the deposition process produces no smoothing effect. Therefore, we have preferred to introduce an additional material in the multilayer structure design. The idea is twofold since it could help to fabricate multilayers having a sharper interface and higher theoretical reflectance.

Unfortunately, the theory does not give a direct indication on how the design of such a multi-component periodic system can be realized in the wavelength range of our interest. Logically thinking, the third material must provide for a higher contrast of refraction indices; but being the most absorbing, it should not completely replace one of the other materials. Obviously, the design needs optimization in order to arrange the materials and to determine the thicknesses of individual layers and the number of periods, which would yield the multilayer peak reflectance at a given wavelength. A special code, which exploits the optimization function from the *Matlab* toolbox, was developed for this purpose. An iterative algorithm applied to calculate the reflectivity of multi-component multilayers, was described previously in [8].

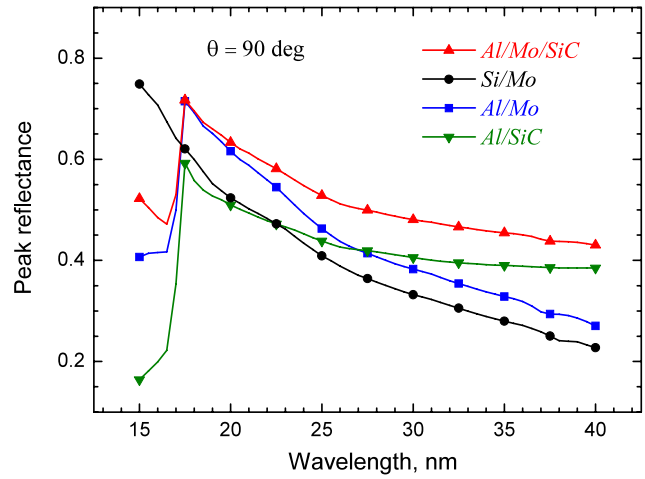


Fig. 2 Peak theoretical reflectance of Si/Mo, Al/Mo, Al/SiC and Al/Mo/SiC multilayers at normal incidence in the wavelength range from 15 to 40 nm. Calculations are performed for perfect structures (zero roughness) of 50 periods. For clarity reasons, the results are plotted with the step of 2.5 nm

We have selected refractory metals W or Mo as the high absorbing material to introduce in the multilayer structure along with Al and SiC. The calculations have been made for various combinations of Al, W and SiC in the spectral range from 15 to 40 nm with a step of 0.5 nm. The same procedure was performed for Al, Mo and SiC. The best reflectivity is expected to yield with the Al/Mo/SiC system (the order of deposition is given from left to right). Results for a perfect (zero roughness) Al/Mo/SiC multilayer of 50 periods are presented in Fig. 2 along with those calculated for few two-component systems for comparison: Al/SiC, Al/Mo and Si/Mo. The maximum reflectance of Al/W/SiC (not shown here) was found to be a few percent lower than that of Al/Mo/SiC in the whole range. It is also inferior to Al/Mo at $\lambda < 22.8$ nm.

The spectral selectivity of both Al/Mo/SiC and Al/W/SiC is not as good as one can achieve with the Al/SiC system. Nevertheless, the new three-component multilayers are expected to have about 20 to 30% more narrow spectral bandpass than Mo/Si multilayers in the range of our interest.

3.2 Experimental results and discussion

Based on the above reasoning, we have prepared a set of Al/W/SiC and Al/Mo/SiC multilayers. The GIXR results revealed spectacularly different behavior of angular-dependent x-ray reflectivity of three-component multilayers compare to the Al/SiC samples of similar periods. The distinctive features of the GIXR curves are the superior intensity and the bigger number of Bragg's peaks of higher orders. A typical example of a comparison, Al/Mo/SiC versus Al/SiC, is shown in Fig. 3. Structural parameters of the multilayers deduced from fits to the measured θ–2θ curves are

given in the caption to Fig. 3 and in Tables 1, 2. Their analysis supports the conclusion on the reduced average roughness.

As in case of two-component multilayers, we have selected a number of three-component samples with the periods of 9, 10 and 16 nm for *at-wavelength* characterization at normal incidence. Dedicated EUV reflectivity measurements were performed at the same *LIXAM* facility and at *BEAR* beamline of *Elettra*. The results are summarized in Table 2. Among the short-period multilayers, the Al/Mo/SiC samples exhibit reasonably good reflectance, which attains nearly 50% at 17.3 nm and more than 45% at 19.2 nm. At the long wavelength end of the region of our interest, around 30 nm, the better reflectance of ∼30% is measured with one of the Al/W/SiC structures. The experimentally determined spectral selectivity is consistent with the calculated one.

Representative examples of measured and simulated EUV reflectivity spectra of Al/Mo/SiC and Al/W/SiC multilayers are shown in Figs. 4 and 5. A lack of good agreement between theoretical and experimental data was observed, especially for the short-period multilayers. In the first approximation, the theoretical reflectivity of the multilayers was calculated with values of the layers thickness and roughness issued from analysis of the GIXR data, while the roughness impact on the normal incidence reflectivity may vary depending on the morphology of imperfections at the interfaces. Moreover, there are other important aspects to account for while simulating the performance of reflecting multilayer coating designed for various EUV applications.

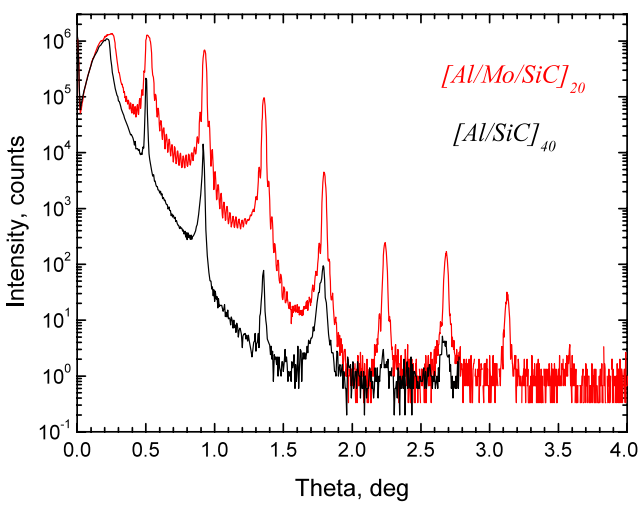


Fig. 3 Grazing incidence x-ray reflectivity curves of two Al-based multilayers: Al/SiC (40 periods of 10.0 nm) and Al/Mo/SiC (20 periods of 9.9 nm)

Foremost, accurate knowledge of the optical constants of the materials is needed. In the EUV range, their experimental determination is quite a difficult task because of strong absorption of the radiation by nearly all materials [34]. This is why the data reliability and accuracy varies from source to source.

On the other hand, the optical properties of the materials in thin film or multilayer form depend on their microstructure. For instance, the state of a metal layer may change from amorphous to crystalline with the layer thickness [35]. It is known that the density of thin amorphous Mo films (<2 nm) can be as low as just 80 ÷ 90% with respect to the bulk Mo density [36]. Therefore, the refractive index of such a reduced density Mo film differs from that of the bulk crystalline material, which is usually available for reflectivity calculations.

In both Al/W/SiC and Al/Mo/SiC multilayers, the high absorbing layers, Mo or W, are rather thin (in the order of 2 nm). While in case of the W layer this value is already beyond the crystallization threshold, the Mo layers are most probably in the amorphous state. This can explain the overall reduction of the reflectivity of Al/Mo/SiC multilayers with respect to calculated values and the better reflectivity of Al/W/SiC at about 30 nm.

Another aspect to consider is the possible formation of oxide layer on top of the stack upon exposure to air. In case of the top SiC layer, its native oxide is SiO_2, though there is experimental evidence that oxidation of SiC could result in mixed oxide products containing C species [37]. The oxygen might also penetrate into underlying layers (Mo, Al) throughout the SiC layer, which is very thin (∼0.8 nm) in the short-period multilayers.

Table 2 Structural parameters and optical properties of Al/Mo/SiC and Al/W/SiC multilayers measured at near-normal incidence ($\theta = 80$ deg). Here, the individual layer thicknesses are given in the order of deposition, and the order of interfaces is Mo (or W)-on-Al/SiC-on-Mo (or W)/Al-on-SiC

Multilayer type	Period, nm	Period number	Layers thickness, nm	RMS roughness, nm	Peak position, nm	Selectivity, $\lambda/\Delta\lambda$	Reflectivity, %
Al/Mo/SiC	16.4	15	11.2/1.7/3.5	0.9/1.2/1.0	30.2	13	28.8
	9.9	20	7.4/1.7/0.8	0.6/0.8/0.6	19.2	16	45.7
	8.9	20	6.3/1.8/0.8	0.6/0.8/0.6	17.3	21	49.2
Al/W/SiC	16.1	15	10.1/2.0/4.0	0.9/1.1/0.9	29.9	15	30.0
	9.7	25	5.9/2.0/1.8	0.9/1.2/1.0	18.6	16	25.9

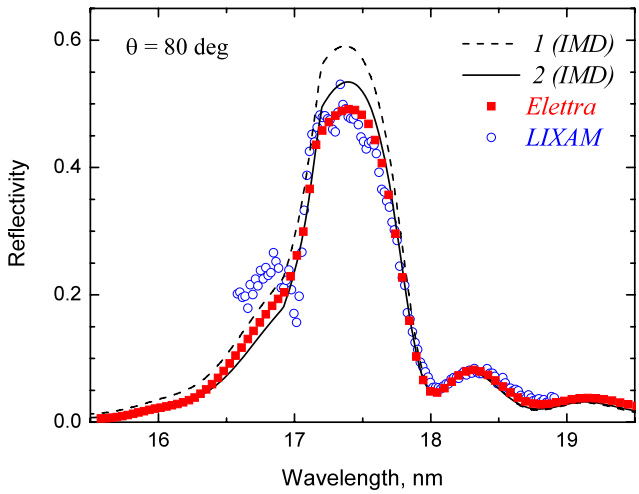


Fig. 4 Reflectivity of Al/Mo/SiC multilayer (20 periods of 8.9 nm) measured with EUV laser-plasma source at *LIXAM* (*open circles*) and with synchrotron radiation at *Elettra* (*squares*). The theoretical reflectivity is calculated using the *IMD* program: for the multilayer parameters determined from GIXR measurements (*dashed line*—1); under the assumption of a 10% reduced density of the Mo layers and replacement of the outermost SiC layer by a 1.5 nm thin SiO_2 layer (*solid line*—2)

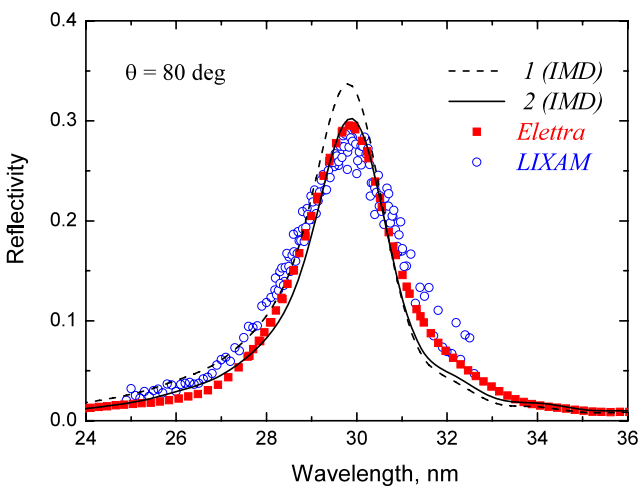


Fig. 5 Reflectivity of Al/W/SiC multilayer (15 periods of 16.1 nm) measured with EUV laser-plasma source at *LIXAM* (*open circles*) and with synchrotron radiation at *Elettra* (*squares*). The theoretical reflectivity is calculated using the *IMD* program: no oxidation of the outermost SiC layer (*dashed line*—1) and its partial oxidation with formation of a 2 nm thin SiO_2 layer on top of the stack (*solid line*—2)

To support the hypotheses mentioned above, we have simulated the multilayer reflectivity with reduced (by about 10%) density of Mo and/or with totally or partially oxidized outermost SiC layer. We considered the formation of the SiO_2 layer of various thicknesses (up to 2 nm according to the density ratio between SiC and SiO_2) on top of the multilayer stack. The resulting simulated spectra that now match better with the experimental data are shown in Figs. 4 and 5.

In the future design of three-component Al-based multilayers we plan to introduce and optimize a capping layer by taking into account the material oxidation as reported, for instance, in [23].

The possible formation of chemical compounds can be detected by x-ray emission spectroscopy (XES). This technique was employed to determine the chemical state of the Al and Si atoms presented within the multilayer structures. No change of the state was observed from XES analysis of the shape of Al K_β and Si K_β emission bands [38] and further study is in progress.

4 Conclusion

We have reported on the development of Al-based two- and three-component multilayers for the EUV range. The particular problem is the large roughness of Al layers associated with their polycrystalline structure. Therefore, we have started from optimization of the deposition process, which has allowed us to grow relatively smooth Al films. However, we have not succeeded to fabricate two-component multilayers Al/SiC and Al/B_4C of decently good optical quality, because the problem of high interfacial roughness was still significant. In order to improve the EUV performance of Al-based coatings, we have proposed to introduce an additional material (W or Mo) in the basic structure (Al/SiC) design. The multilayer parameters providing maximum theoretical reflectance of three-component multilayers in the range from 15 to 40 nm were determined prior to experiment. The order of deposition, layer thicknesses and the number of periods were selected in accordance with the results of optimization. For the first time, Al/W/SiC and Al/Mo/SiC multilayer mirrors for three wavelengths: 17, 19 and 30 nm, have been produced and characterized.

The conclusion on reduced average roughness of the new three-component Al/W/SiC and Al/Mo/SiC multilayers is drawn from analysis of the GIXR data. The EUV reflectance measurements have revealed significantly improved performance of the three-component system compare to the two-component one of the same period. The measured peak reflectance as high as 45.7 and 49.2% at near-to-normal incidence is achieved with Al/Mo/SiC multilayers designed for 19 and 17 nm. For both Al/Mo/SiC and Al/W/SiC we find the peak reflectance values of about 30% at 30 nm.

After the deposition, all samples were stocked in air during a few months before being measured with synchrotron radiation. During this period, no evolution of the multilayer parameters was observed by GIXR measurements. Nevertheless, we agree that a longer period of observation is needed to check the stability of the optical properties of these new Al-based systems.

According to simulations of the EUV reflectivity, the replacement of Mo (or W) and SiC with some other materials

can be interesting from a practical point of view. We would also suggest to apply the three-component approach to the design of Mg-based multilayers for the wavelength range $\lambda > 25$ nm.

Acknowledgements The authors appreciate the essential contribution of Prof. Stefano Nannarone, Dr. Nicola Mahne and Dr. Angelo Giglia, who helped us to perform the reflectivity measurements at *BEAR* beamline of *Elettra Sincrotrone Trieste*. This work was supported by *CNES* (*Centre National d'Études Spatiales*) in the framework of *R&T* program and by the project *ANR 07-BLAN-0150*. The multilayer fabrication and characterization have been carried out at the facility, which is a part of *CEMOX* (*Centrale d'Elaboration et de Métrologie des Optiques X*).

References

1. E. Spiller, *Soft X-Ray Optics* (SPIE, Bellingham, 1994)
2. A.M. Hawryluk, N.M. Seglio, D.G. Stearns, J. Vac. Sci. Technol. B **6**, 2153 (1988)
3. J.-P. Chauvineau, J.-P. Marioge, M. Mullot, A. Raynal, G. Tissot, L. Valiergue, Proc. SPIE **1546**, 576 (1992)
4. M.-F. Ravet, F. Bridou, X. Zhang-Song, A. Jerome, F. Delmotte, R. Mercier, M. Bougnet, P. Bouyries, J.-P. Delaboudiniere, Proc. SPIE **5250**, 99 (2003)
5. J.M. Slaughter, B.S. Medower, R.N. Watts, C. Tarrio, T.B. Lucatorto, C.M. Falco, Opt. Lett. **19**, 1786 (1994)
6. M. Grigonis, E.J. Knystautas, Appl. Opt. **36**, 2839 (1997)
7. D. Windt, S. Donguy, J. Seely, B. Kjornrattanawanich, Appl. Opt. **43**, 1835 (2004)
8. J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, F. Bridou, M.-F. Ravet, A. Jerome, Appl. Opt. **44**, 384 (2005)
9. Y. Kondo, T. Ejima, K. Saito, T. Hatano, M. Watanabe, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **467–468**, 333 (2001)
10. H. Takenaka, S. Ichimaru, T. Ohchi, E.M. Gullikson, J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom. **144–147**, 1047 (2005)
11. H. Maury, P. Jonnard, K. Le Guen, J.-M. André, Z. Wang, J. Zhu, J. Dong, Z. Zhang, F. Bridou, F. Delmotte, C. Hecquet, N. Mahne, A. Giglia, S. Nannarone, Eur. Phys. J. B **64**, 193 (2008)
12. K.P. Dere, E. Landi, H.E. Mason, B.C. Monsignori Fossi, P.R. Young, Astron. Astrophys. Suppl. Ser. **125**, 149 (1997)
13. F.E. Fernandez, C.M. Falco, Proc. SPIE **563**, 195 (1985)
14. T.K. Vien, J.P. Delaboudiniere, Y. Lepetre, Proc. SPIE **688**, 129 (1986)
15. J.P. Delaboudiniere, Rutherford Appleton Lab. Rep. **87–043**, 133 (1987)
16. H. Nii, M. Niibe, H. Kinoshita, Y. Sugie, J. Synchrotron Radiat. **5**, 702 (1998)
17. D. Windt, Proc. SPIE **3448**, 280 (1998)
18. PXRMS multilayer survey results Zr/Al: http://www.cxro.lbl.gov/multilayer/survey.html
19. S.Yu. Zuev, S.V. Kuzin, A.Ya. Lopatin, V.I. Luchin, V.N. Polkovnikov, N.N. Salashchenko, L.A. Suslov, N.N. Tsybin, S.V. Shestov, *Proc. of the workshop "X-ray optics 2008"*, Chernogolovka (2008), p. 50 (in Russian)
20. E. Ma, C.V. Thompson, L.A. Clevenger, J. Appl. Phys. **69**, 2211 (1991)
21. H. Nii, M. Miyagawa, Y. Matsuo, Y. Sugie, M. Niibe, H. Kinoshita, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 5338 (2002)
22. Q.H. Guo, J.J. Shen, H.M. Du, E.Y. Jiang, H.L. Bai, J. Phys. D: Appl. Phys. **38**, 1936 (2005)
23. J. Gautier, F. Delmotte, F. Bridou, M.-F. Ravet, F. Varniere, M. Roulliay, A. Jerome, I. Vickridge, Appl. Phys. A **88**, 719 (2007)
24. Ch. Hecquet, M. Roulliay, F. Delmotte, M.-F. Ravet-Krill, A. Hardouin, M. Idir, Ph. Zeitoun, J. Phys. IV **138**, 259 (2006) (in French)
25. S. Nannarone, F. Borgatti, A. De Luisa, B.P. Doyle, G.C. Gazzadi, A. Giglia, P. Finetti, N. Mahne, L. Pasquali, M. Pedio, G. Selvaggi, G. Naletto, M.G. Pelizzo, G. Tondello, AIP Conf. Proc. **705**, 450 (2004)
26. D.L. Windt, Comput. Phys. **12**, 360 (1998)
27. S. Bajt, J. Alameda, T. Barbee, W.M. Clift, J.A. Folta, B. Kaufmann, E. Spiller, Opt. Eng. **41**, 1797 (2002)
28. S. Braun, H. Mai, M. Moss, R. Scholtz, A. Leson, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 4074 (2002)
29. S. Yulin, N. Benoit, T. Feigl, N. Kaiser, Microelectron. Eng. **83**, 692 (2006)
30. M. Singh, J.J.M. Braat, Appl. Opt. **39**, 2189 (2000)
31. P. Boher, L. Hennet, Ph. Houdy, Proc. SPIE **1345**, 198 (1991)
32. J.I. Larruquert, Opt. Soc. Am. A **19**, 391 (2002)
33. M.M. Baryshnikova, A.M. Satanin, Tech. Phys. Lett. **34**, 441 (2008)
34. C. Tarrio, R.N. Watts, T.B. Lucatorto, J.M. Slaughter, C.M. Falco, Appl. Opt. **37**, 4100 (1998)
35. E. Meltchakov, V. Vidal, H. Faik, M.-J. Casanove, B. Vidal, J. Phys.: Condens. Matter **18**, 3355 (2006)
36. M. Lohmann, F. Klabunde, J. Blasing, P. Veit, T. Drusedau, Thin Solid Films **342**, 127 (1999)
37. S. Bajt, N.V. Edwards, T.E. Madey, Surf. Sci. Rep. **63**, 73 (2008)
38. P. Jonnard, K. Le Guen, M.-H. Hu, J.-M. André, E. Meltchakov, C. Hecquet, F. Delmotte, A. Galtayries, Proc. SPIE **7360**, 73600O (2009)

Appl Phys A
DOI 10.1007/s00339-009-5400-2

Applied Physics A
Materials Science & Processing

Aperiodic multilayer mirrors for efficient broadband reflection in the extreme ultraviolet

Y. Ménesguen · S. de Rossi · E. Meltchakov · F. Delmotte

Received: 29 May 2009 / Accepted: 20 August 2009
© Springer-Verlag 2009

Abstract Recent extreme ultraviolet sources using high-harmonic generation in a rare gas make new optics developments necessary. We report on the study and development of multilayer structures with efficient reflectivity in the 35–75 eV energy range. We have optimized, deposited and characterized two aperiodic broadband mirrors consisting of a Mo, Si and B_4C thin-film stack. We used the needle procedure in order to optimize mirror reflectivity. The magnetron sputter deposited multilayers have been calibrated and characterized using Cu K_α grazing incidence X-ray reflectometry. Reflectivity measured at near-normal incidence on a synchrotron radiation source reaches 12% with a full width at half maximum of nearly 40 eV. Experimental results are compared with theoretical simulation using available optical constants for Mo, Si and B_4C in this spectral range.

PACS 42.15.Eq · 42.79.Bh · 78.67.Pt

1 Introduction

Optics in the extreme ultraviolet (EUV) field are difficult to design because of strong absorption at these wavelengths for most materials, but some theoretical work dealt with this [1]. However, periodic Mo/Si multilayers were found to have interesting properties, as reported by Barbee et al. [2]. These multilayers appear to have a maximal theoretical reflectivity of 75% at 13.5 nm for near-normal incidence. Due to recent interest in EUV lithography applications [3], a lot of work was done to improve efficiency of Mo/Si mirrors and approach the theoretical limit. Reflectivity values higher than 0.7 have already been reported [4]. One major point to address to improve reflectivity is the quality of interfaces. The composition and thickness of Mo/Si interfaces have been extensively studied [5–7]. Several approaches were proposed to improve reflectivity taking into consideration these interfacial properties. One approach consists in modeling the silicide at the interfaces [8]. Another approach consists in sputtering a thin layer of another material to prevent interdiffusion [9]. In previous papers, we have shown that boron carbide (B_4C) can improve the interfacial properties [5] and can also play the role of a third material [10], which should improve reflectivity compared with two-material multilayers.

Besides EUV lithography, EUV optics became a key element in the field of ultra-short light pulses. Indeed, high spectral bandwidth is required to achieve attosecond pulses, which can only be done with EUV photons. These high-energy photons are generated by a pulsed fs laser in a rare gas [11, 12] and need special optics to be manipulated. Broadband mirrors, made of aperiodic Mo/Si stacks, have already been deposited and characterized in the energy range 80–100 eV [8]. Experimental reflectivity reported can reach 15% for a nearly 15 eV full width at half maximum (FWHM) [13]. These kinds of mirrors are of main interest for several applications, such as generation of attosecond pulses from high-harmonic generation in a rare gas [14]. Moreover, development of broadband mirrors for lower energies (typically 35–75 eV) is also useful for astrophysics spectroscopy, where this wavelength region is rich in emission lines [15–17].

In this paper, we report on the possibility to design and deposit efficient broadband mirrors in the spectral range 35–75 eV by using three-material aperiodic multilayers.

Y. Ménesguen (✉) · S. de Rossi · E. Meltchakov · F. Delmotte
Laboratoire Charles Fabry, l'Institut d'Optique,
Université Paris-Sud, CNRS, Campus Polytechnique, RD 128,
91127 Palaiseau Cedex, France
e-mail: yves.menesguen@cea.fr

Published online: 19 September 2009

In the first part, we discuss optimization of broadband mirrors in the EUV range starting at 35 eV up to 75 eV using the three-material system Mo/Si/B_4C. In the second part, we describe the realization process, using a RF and DC magnetron sputtering system. In the last part, we present the reflectivity measured at the BEAR beamline at the Elettra facility in Italy [18], and compare with the simulation results.

2 Broadband mirror design

We optimize multilayer mirrors for maximum reflectivity using the three materials Mo/Si/B_4C, growth conditions of which are well controlled and routinely used for EUV optics [19] in the laboratory. We use the commercial thin-film design program TFCalc (Software Spectra Inc.) as it is versatile and makes it possible to enter optical constants of the materials, enter new materials, choose the optimization procedure between gradient or simplex methods and allow a wide variety of possible targets. The optimization procedure includes a 'needle' procedure. The needle procedure adds randomly one or more new layers in the stack of any specified material after a local optimization and starts again a new optimization until it reaches the criteria. This method ensures exploring a wider region in the parameter space, but a seed remains needed for faster and more reliable convergence. In all the cases, the calculation procedure remains the minimization of a merit function, as in [8, 20–22]. At the end of the optimization process, layers with zero thicknesses are automatically removed but still some layers can have non-realistic thicknesses, and some constraints can also be given to the program.

We optimize two mirrors at 10° incidence in s polarization and in the 35–75 eV range with different types of reflectivity targets. We use a gradient method with the needle optimization, using the optical parameters given in [23]. A first optimization process is done without any constraints of any kind; we run a last optimization procedure using a gradient method with constraints on the minimum deposited thicknesses, in particular for the B_4C barrier layers, to have realistic values. The first mirror (mirror A) maximizes the reflectivity between 40 and 75 eV with a flat profile and the seed was a periodic multilayer with maximum reflectivity at 50 eV. The second mirror (mirror B) is a multichannel mirror for high-harmonic filtering; the seed was made of thick Si spacers inside a periodic multilayer structure. The multichannel mirror can be seen as a generalization of the dual-channel mirror that we have developed for astrophysics [24]. It maximizes the reflectivity only for the odd high-harmonic wavelengths, starting from the 23rd to the 43rd generated by a 800-nm fs laser in an atomic vapor, which corresponds to the 35–66 eV energy range. Using this mirror at a different incidence angle makes it possible to select the even harmonics without changing the contrast.

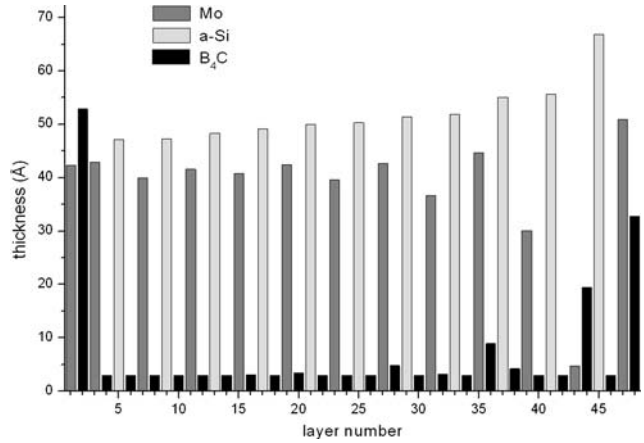


Fig. 1 Sequence of layers starting from the substrate of the mirror A with a flat reflectivity between 35 eV and 75 eV

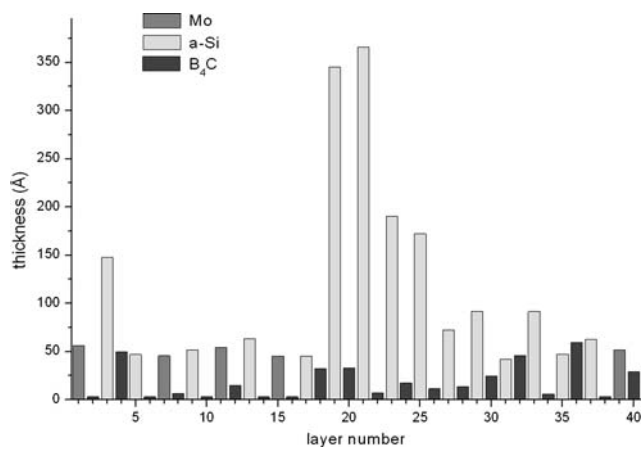


Fig. 2 Sequence of layers starting from the substrate of the mirror B reflecting the odd high harmonics from H_{23} to H_{43}

The designed multilayers are presented in Figs. 1 and 2. The first sequence shows the result for a flat reflectivity profile (mirror A), where it appears that Mo and Si have comparable thicknesses and B_4C is used mainly as an interfacial barrier layer. We can notice a slight tendency of the Si thicknesses to decrease from the surface. The second sequence shows the layer thicknesses for a multipeak reflectivity profile (mirror B). It appears that thick Si layers are needed near the center of the structure. They act as spacers between the front and back aperiodic three-material structures.

3 Sample preparation

The gap that may appear between results of optimization calculations and what can be grown is addressed by some

constraints on the thicknesses of layers in the optimization process. First of all, because of the materials chosen, interdiffusion of Si and Mo at the interfaces may be a problem. In order to prevent period contraction and limit intermixing, we use a thin B_4C layer of 3 Å as a barrier layer at every Mo/Si interface that could appear in the first optimization procedure. But, B_4C is not only used as a barrier layer but also as a material participating in the reflectivity properties of the stack, which appears in the sequences in Figs. 1 and 2 with layer thicknesses larger than 3 Å. The samples are grown on a 600-µm-thick Si substrate and end with a thick enough B_4C layer to prevent the underlying layers from oxidation.

The multilayers were deposited in a DC and RF magnetron sputtering system. The chamber of preparation has a nominal vacuum of 2×10^{-8} Torr. The sputtering was performed with Ar gas at a pressure of 2 mTorr. The RF target powers were 150 W for both Si and B_4C and a direct current of 0.06 A for Mo. The sample is rotated while passing over the targets and the number and speed of scans determine the thickness of material sputtered. Due to the aperiodic concept, every layer thickness needs to be specified individually in terms of scans and rotational speeds over the target. The speeds of growth were characterized with periodic structures and found to be around 5 Å/scan, 13 Å/scan and 23 Å/scan for B_4C, Mo and Si respectively at 1°/s rotational speed. We performed reflectivity measurements in X-ray grazing incidence at the Cu K_α line to control the calibration of our material deposition.

4 Results and discussion

The mirror A was characterized in grazing incidence and the results are shown in Fig. 3. A small correction of +1.3% in Mo layer thicknesses is needed to match with a very good agreement the simulation to the measurements. This small discrepancy was used to recalibrate with more accuracy the speed of growth of Mo. This new calibration was used for mirror B.

The mirror B was also characterized in grazing incidence; the results are shown in Fig. 4. The results are in excellent agreement with the simulation, meaning that the thicknesses are what we expected.

Reflectivity measurements were performed at the BEAR beamline at the Elettra facility. Figure 5 shows the results for the flat reflectivity profile between 40 and 75 eV. We measured a maximum reflectivity of around 0.12 (black squares), that is to say, 0.04 less than expected first (dotted line); it is due to interface residual roughness and/or intermixing. The full width at half maximum is 38 eV, which is amongst the larger reported in this energy range. We fitted the measurements with new optical constants available for B_4C [25] and Mo [26] and the already well-known ones for

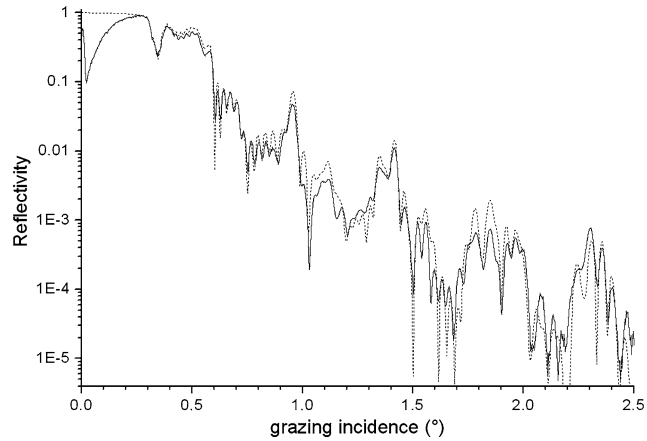


Fig. 3 Reflectance at Cu K_α line of the flat reflectivity profile sample. The *solid line* represents the measured data and the *dotted line* is the calculation with a 1.3% thickness correction on the Mo layers

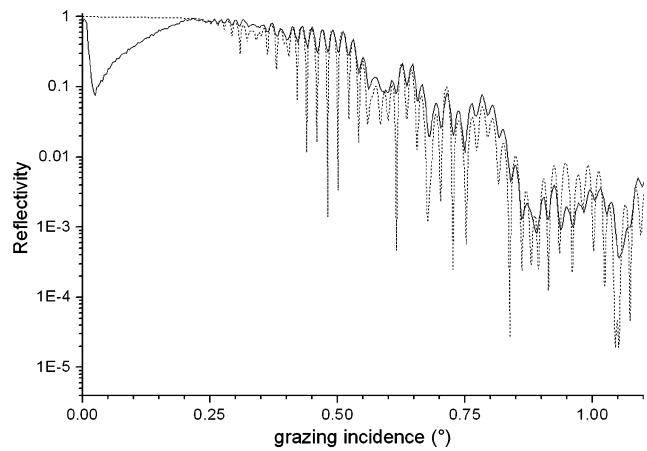


Fig. 4 Reflectance at the Cu K_α line of the multipeak profile sample. The *solid line* represents the measured data and the *dotted line* is the calculation

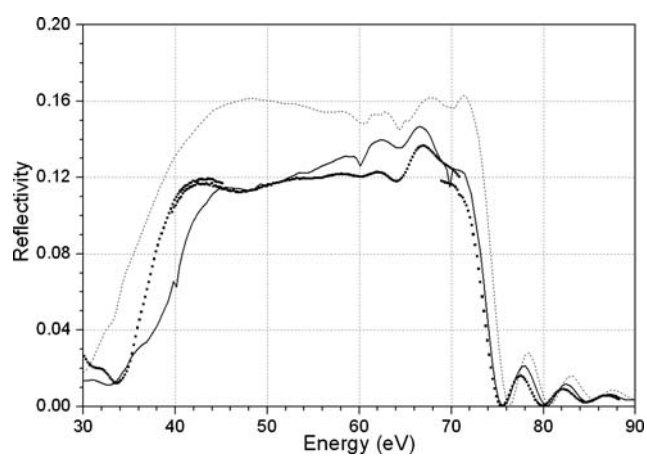


Fig. 5 Mirror A: reflectivity. *Dotted line*: results of optimization process. *Black squares*: measurement data. *Solid line*: simulation results with Mo corrected thicknesses and optical constants from [26] and B_4C new optical constants from [25]

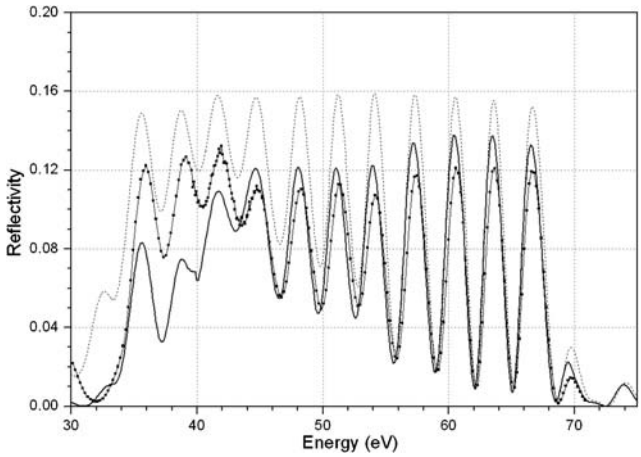


Fig. 6 Mirror B: reflectivity. *Dotted line*: results of optimization process. *Black squares*: measurement data. *Solid line*: simulation results with Mo optical constants from [26] and B_4C optical constants from [25]

Si [23]. We also tuned the thicknesses of Mo and Si so as to match the minima of reflectivity at 77 and 82 eV with measurements (solid line), where Mo optical constants are the most reliable. The shape of the reflectivity simulation reproduces quite well the measurements, but for energies lower than 50 eV discrepancies becomes significant, due to bad knowledge of optical constants of deposited materials, especially for Mo, which is difficult to measure in this energy region.

Figure 6 shows the results for the multichannel profile. We measured a maximum reflectivity of around 0.12 (black squares), that is to say, 0.04 less than expected first (dotted line), mainly due to interface residual roughness once again. We fitted the measurements with new optical constants available for B_4C [25] and Mo [26] and there was no need for thickness tuning (solid line). The positions of minima and maxima matched very well. If the results are in excellent agreement with measurements, this is nevertheless not the case for energies lower than 45 eV, where important discrepancies appear between simulations and measurements. The results show efficient filtering for harmonics above 50 eV with a maximum contrast of 85%.

The important discrepancies between simulations and measurements appearing below 50 eV come from the optical constants of Mo. In particular, the data for Mo in the literature [26] does not fit well with that of our sputtered Mo.

5 Conclusion

We have presented new developments in wide broadband mirrors for the EUV energy range that could be interesting for attosecond light pulses and high-harmonic management. These mirrors were conceived and realized in our laboratory and measured at the BEAR beamline at Elettra, Italy. Reflectivity measurements showed very good agreement with our simulations, with some discrepancies at lowest energies coming from a bad knowledge of our Mo optical constants.

Acknowledgements The authors would like to thank Prof. S. Nannarone, A. Giglia and N. Mahne at Synchrotron Trieste for their assistance during synchrotron radiation measurements. All multilayer depositions have been carried out on the deposition machine at CEMOX (Centrale d'élaboration et de métrologie des optiques X). This research was supported by ANR project 07-BLAN-0150.

References

1. B. Pardo, T. Megademini, J. André, Rev. Phys. Appl. **23**, 1579 (1988)
2. J.T.W. Barbee, S. Mrowka, M.C. Hettrick, Appl. Opt. **24**, 883 (1985)
3. C. Montcalm, R.F. Grabner, R.M. Hudyma, M.A. Schmidt, E. Spiller, C.C. Walton, M. Wedowski, J.A. Folta, Appl. Opt. **41**, 3262 (2002)
4. S. Braun, H. Mai, M. Moss, R. Scholz, A. Leson, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 4074 (2002)
5. H. Maury, P. Jonnard, J.-M. André, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, F. Delmotte, M.-F. Ravet-Krill, A. Jérome, P. Holliger, Thin Solid Films **514**, 278 (2006)
6. H. Maury, J.-M. André, J. Gautier, F. Bridou, F. Delmotte, M.-F. Ravet, P. Holliger, P. Jonnard, Surf. Interface Anal. **38**, 744 (2006)
7. A. Patelli, J. Ravagnana, V. Rigatoa, G. Salmasoa, D. Silvestrinia, E. Bontempic, L.E. Deperoc, Appl. Surf. Sci. **238**, 262 (2004)
8. A.L. Aquila, F. Salmassi, F. Dollar, Y. Liu, E.M. Gullikson, Opt. Express **14**, 10073 (2006)
9. S. Bajt, J.B. Alameda, T.W. Barbee, W.M. Clift, J.A. Folta, B. Kaufmann, E.A. Spiller, Opt. Eng. **41**, 1797 (2002)
10. J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, F. Bridou, M.-F. Ravet, A. Jérome, Appl. Opt. **44**, 384 (2005)
11. Y. Mairesse, A. de Bohan, L.J. Frasinski, H. Merdji, L.C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taïeb, B. Carré, H.G. Muller, P. Agostini, P. Salières, Science **302**, 1540 (2003)
12. P. Agostini, L.F. DiMauro, Rep. Prog. Phys. **67**, 813 (2004)
13. T. Kuhlmann, S.A. Yulin, T. Feigl, N. Kaiser, H. Bernitzki, H. Lauth, Proc. SPIE **4688**, 509 (2002)
14. M. Schultze, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, M. Hofstetter, J. Kim, D. Kim, F. Krausz, U. Kleineberg, New J. Phys. **9**, 1 (2007)
15. B.N. Dwivedi, Space Sci. Rev. **68**, 289 (1994)
16. M.A. Barstow, M.P. Kowalski, R.G. Cruddace, K.S. Wood, F. Auchere, N.J. Bannister, M.F. Bode, G.E. Bromage, M.R. Burleigh, A.C. Cameron, A. Cassatella, F. Delmotte, J.G. Doyle, B. Gaensicke, B. Gibson, C.S. Jeffery, C. Jordan, N. Kappelmann, R. Lallement, J.S. Lapington, D. de Martino, S.A. Matthews, M. Orio, E. Pace, I. Pagano, K.J.H. Phillips, M.-F. Ravet, J.H.M.M. Schmitt, B.Y. Welsh, K. Werner, G. Del Zanna, Exp. Astron. **23**, 169 (2009)
17. C. Hecquet, F. Delmotte, M.-F. Ravet-Krill, S. de Rossi, A. Jerome, F. Bridou, F. Varnière, E. Meltchakov, F. Auchère, A. Giglia, N. Mahne, S. Nannarone, Appl. Phys. A **95**, 401 (2009)
18. S. Nannarone, F. Borgatti, A. Deluisa, B.P. Doyle, G.C. Gazzadi, A. Giglia, P. Finetti, N. Mahne, L. Pasquali, M. Pedio, G. Selvaggi, G. Naletto, M.G. Pelizzo, G. Tondello, in *American Institute of Physics Conference Series*, ed. by T. Warwick, J. Arthur, H.A. Padmore, J. Stöhr (AIP, New York, 2004), p. 450

19. F. Delmotte, J. Gautier, M.F. Ravet, F. Bridou, A. Jerome, J. Phys. IV Fr. **127**, 69 (2005)
20. A.G. Michette, Z. Wang, Opt. Commun. **177**, 47 (2000)
21. Z. Wang, A.G. Michette, J. Opt. A, Pure Appl. Opt. **2**, 452 (2000)
22. K. Powell, J.M. Tait, A. Michette, Proc. SPIE **4145**, 254 (2001)
23. B. Henke, E. Gullikson, J. Davis, At. Data Nucl. Data Tables **54**, 181 (1993)
24. J. Gautier, F. Delmotte, M.-F. Ravet, A. Jérome, F. Bridou, F. Varnière, F. Auchère, Opt. Commun. **281**, 3032 (2008)
25. R. Soufli, A.L. Aquila, F. Salmassi, M. Fernández-Perea, E.M. Gullikson, Appl. Opt. **47**, 4633 (2008)
26. C. Tarrio, R.N. Watts, T.B. Lucatorto, J.M. Slaughter, C.M. Falco, Appl. Opt. **37**, 4100 (1998)

Résumé
Les recherches que j'ai menées et encadrées au sein de l'équipe Optique XUV du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique s'inscrivent dans une dynamique de développement rapide du domaine spectral XUV (1 à 60 nm de longueur d'onde). D'un coté, les sources (rayonnement synchrotron, génération d'harmoniques, laser X, laser à électrons libres…) requièrent des optiques toujours plus performantes; d'un autre coté, les applications (diagnostiques de plasma chaud, physique solaire, microscopie X, lithographie EUV, analyse X…) imposent de nouvelles contraintes sur la conception des empilements multicouches. Les miroirs multicouches constituent en fait l'unique moyen d'obtenir des optiques efficaces fonctionnant à des angles d'incidence non rasants dans ce domaine spectral. Nos travaux portent sur l'étude des matériaux en couches minces corrélée à l'étude des propriétés optiques des multicouches. L'objectif est d'aboutir, par une meilleure connaissance des phénomènes physiques dans ces empilements de couches nanométriques, à des composants multicouches et à de fonctions optiques jusqu'alors inaccessibles dans le domaine XUV. Nous montrerons à travers plusieurs exemples comment nous avons réussi d'une part à améliorer les performances des miroirs multicouches sur une gamme spectrale étendue, et d'autre part, à concevoir de nouvelles fonctions optiques : lames séparatrices, miroirs à large bande passante, miroirs bi-bandes, miroirs à compensation de phase.

Mots Clefs
Optique des rayons X et extrême ultraviolet, pulvérisation cathodique magnétron, couches minces, miroir interférentiel.

Abstract
The XUV spectral domain (1-60 nm wavelength range) has experienced rapid growth in recent years. On one side, the sources (synchrotron radiation, harmonic generation, x-ray laser, free-electron laser ...) require ever more efficient optics, on the other hand, applications (diagnostics of hot plasma, solar physics, x-ray microscopy, EUV lithography, x-ray analysis ...) provide new constraints on the design of multilayer stacks. The multilayer mirrors are the only way to achieve efficient optics operating at non-grazing incidence angles in this spectral range. Our work within the team XUV Optics at Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique focuses on the study of materials in thin layers correlated to the study of optical properties of multilayers. The objective is to achieve new multilayer components previously unavailable in the XUV domain, through a better understanding of physical phenomena in these nanolayer stacks. We show through several examples of how we have managed both to improve the performance of multilayer mirrors in a broad spectral range, and secondly, to develop new optical functions: beamsplitters, broadband mirrors, dual-band mirrors or phase compensation mirrors.

Keywords
EUV and X-ray Optics, magnetron sputtering, thin film, interferential mirror.