Microscope X dans la fenêtre de l'eau : conception, miroirs à revêtements multicouches et métrologie associée

Catherine Burcklen

▶ **To cite this version:**

Catherine Burcklen. Microscope X dans la fenêtre de l'eau : conception, miroirs à revêtements multicouches et métrologie associée. Optique [physics.optics]. Université Paris Saclay (COmUE), 2017. Français. ⟨NNT : 2017SACLO002⟩. ⟨tel-01468600v2⟩

HAL Id: tel-01468600

https://pastel.hal.science/tel-01468600v2

Submitted on 10 Mar 2017

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.

HAL Authorization

NNT : 2017SACLO002

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY

préparée à

L'INSTITUT D'OPTIQUE GRADUATE SCHOOL

ÉCOLE DOCTORALE N°572
Ondes et Matières (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

par

Catherine BURCKLEN

Microscope X dans la fenêtre de l'eau : conception, miroirs à revêtements multicouches et métrologie associée

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 3 février 2017

Composition du jury :

Mme Sophie KAZAMIAS	Présidente	— Laboratoire de physique des gaz et des plasmas – LASERIX
M. Juan LARRUQUERT	Rapporteur	— Instituto de Òptica – CSIC
M. Pascal PICART	Rapporteur	— Université du Maine
M. Philippe JONNARD	Examinateur	— Laboratoire Chimie Physique Matière et Rayonnement
M. Jérôme PRIMOT	Examinateur	— ONERA-DOTA
Mme Regina SOUFLI	Examinatrice	— Lawrence Livermore National Laboratory
M. Franck DELMOTTE	Directeur de thèse	— Laboratoire Charles Fabry

À ma famille,
À Florian

« C'est dur de se voir dans l'miroir,
Surtout quand on est dans le noir. »
Oldelaf & Monsieur D.

« Always look on the bright side of life ! »
Monty Python

Remerciements

Ce document résume les travaux que j'ai effectués dans le cadre de ma thèse au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Graduate School. Ces trois années ont été pour moi riches en découvertes et expériences nouvelles et je souhaiterais, avant toute chose, remercier vivement toutes les personnes sans qui ces travaux n'auraient jamais vu le jour.

Tout d'abord, j'aimerais remercier Franck Delmotte, mon directeur de thèse. Franck, tu m'as appris énormément durant ces trois années. Je te remercie pour la confiance que tu m'as accordée pendant ma thèse, mais aussi pour les très nombreux conseils que tu m'as apportés, toujours avec beaucoup de patience et de bonne humeur. Merci également à Sébastien de Rossi et Raymond Mercier, mes co-encadrants : un grand merci pour votre patience et pour m'avoir souvent remise sur la bonne voie quand je partais dans tous les sens ! Je souhaiterais également adresser tous mes remerciements à Juan Larruquert et Pascal Picart, qui ont accepté d'être les rapporteurs de ma thèse, ainsi que Sophie Kazamias, Philippe Jonnard, Jérôme Primot et Regina Soufli qui ont accepté de participer à mon jury. Regina, un grand merci pour tout ce que tu m'as appris, ta patience et ta très grande gentillesse. $\sigma\alpha\zeta$ $\epsilon\nu\chi\alpha\rho\iota\sigma\tau\acute{\omega}$!

Je souhaiterais remercier Pierre Chavel, puis Patrick Georges, pour m'avoir accueillie au sein du laboratoire Charles Fabry. Je remercie également l'équipe XUV au grand complet, notamment : Evgueni, grand maître de la MP800, pour nos discussions toujours passionnantes, en particulier sur les multicouches, et pour tes concerts d'accordéon ; Arnaud (« cousin ! ») pour avoir tenté de m'apprendre à parler à l'IBS malgré son moteur fatigué et m'avoir enseigné qu'un certain pays peut se déplacer (on ne dira pas lequel) ; Charles, pour tes nombreux conseils avisés, mais aussi tes inimitables imitations et nos discussions « jardinage de balcon » ; Benoît pour ta bonne humeur et pour m'avoir donné tes conseils de doctorant lorsque j'étais en début de thèse ; Maël, parce que tu as du me supporter pendant deux ans et pour l'instauration des Chocolate Breaks, suivies plus ou moins assidûment par nos cousins de SPIM, Matthieu, Caroline, Lijo, Rafael, Rémy et les autres, que je remercie également ; Anne-Lise, pour m'avoir fait découvrir la bergamote, Jennifer, la future relève en tant que doctorante, et Buntha pour ton enthousiasme communicatif et ta curiosité scientifique sans borne ; et Françoise, Bruno et Fanfan, ce fut un plaisir de discuter avec vous !

Un immense merci également à Christian et Sophie de l'atelier d'optique pour avoir fait des miracles, lorsque je vous demandais l'impossible, et pour votre bonne humeur en toutes circonstances ; Marc pour t'être arraché les cheveux en mesurant les miracles, mais toujours avec bonne humeur ; Patrick, Jean-René et en particulier André, pour le dessin des montages mécaniques divers et variés liés au Schwarzschild.

Mes remerciements s'adressent également à nos collègues du groupe optique du synchrotron SOLEIL, en particulier François, David, Blandine et Muriel, avec qui j'ai eu beaucoup de plaisir à travailler

pendant nos différentes campagnes de manips. Merci également aux collègues du LCPMR : Philippe, Karen, Jean-Michel, Meiyi, ce fut un plaisir de travailler avec vous !

Enfin, mes pensées vont à ma famille et mes amis : ces années de thèse n'auraient pas été les mêmes sans vous et votre soutien. En particulier, un grand merci à Marie-Anne, parce qu'une petite cuillère suffit à nous faire rigoler, et à Jo et mon petit Mathis. Vaïa, merci d'avoir essayé (parfois avec succès ?) de m'extirper de ma tanière pour danser la salsa, et pour nos séances de chants grégoriens. Armande et Ludo, Louise, Lucie, merci d'avoir été là !

Florian, un immense merci (non, pas uniquement pour le café !) pour ton soutien sans limite et sans faille durant ces trois ans, qui n'ont pas été faciles pour toi non plus.

Table des matières

Liste des tableaux **vi**

Table des figures **xi**

Introduction **1**

1 Formation des images dans le domaine des rayons X **5**

1.1 Imagerie dans le domaine des rayons X 5

1.1.1 Rappels théoriques sur l'imagerie 5

1.1.1.1 Grandeurs principales 5

1.1.1.2 Les aberrations en optique 8

1.1.1.3 Surfaces optiques 9

1.1.2 Composants optiques pour rayons X 11

1.1.2.1 Quelques rappels sur les rayons X 11

1.1.2.2 Composants diffractifs 17

1.1.2.3 Composants réflectifs 20

1.1.2.3.1 Miroirs en incidence rasante 21

1.1.2.3.2 Miroirs multicouches 22

1.1.3 Applications et exemples de systèmes d'imagerie dans le domaine XUV 23

1.1.3.1 Lithographie EUV 23

1.1.3.2 Microscopie X 24

1.1.3.2.1 Microscope à lentilles de Fresnel 25

1.1.3.2.2 Microscope à miroirs 26

1.2 Revêtements multicouches 27

1.2.1 Histoire 27

1.2.2 Principe de fonctionnement des revêtements multicouches 28

1.2.3 Quelques exemples de revêtements multicouches 32

1.2.3.1 Revêtements multicouches pour la lithographie EUV 32

1.2.3.2 Multicouches de faible période dans la fenêtre de l'eau 34

1.3 Vers un microscope X à miroirs dans la fenêtre de l'eau 35

1.3.1 L'équipex Morphoscope 35

1.3.2 Microscopie pour la biologie 35

1.3.3 Intérêts de la microscopie X dans la fenêtre de l'eau à miroirs 36

2 Solutions optiques pour la réalisation d'un microscope X **39**
2.1 Point de départ pour l'élaboration du schéma optique . . . 39
2.1.1 Élaboration du cahier des charges . . . 40
2.1.1.1 Longueur d'onde d'utilisation . . . 40
2.1.1.2 Résolution et ouverture numérique . . . 41
2.1.1.3 Grandissement et champ objet . . . 42
2.1.1.4 Récapitulatif du cahier des charges . . . 43
2.1.2 Outils pour la simulation et l'optimisation du design optique . . . 43
2.1.3 Présentation des différentes familles de solutions possibles . . . 45
2.2 Détermination de la famille de solution la plus adaptée . . . 46
2.2.1 Objectif de Schwarzschild seul . . . 46
2.2.2 Solution à trois miroirs . . . 48
2.2.2.1 Mise en place géométrique . . . 48
2.2.2.2 Optimisation des paramètres . . . 50
2.2.2.3 Bilan radiométrique . . . 53
2.2.3 Solution avec conversion X → visible . . . 55
2.2.3.1 Mise en place géométrique et adaptation du cahier des charges . . . 56
2.2.3.2 Bilan radiométrique . . . 59
2.2.4 Conclusion . . . 61
2.3 Optimisation et design final du microscope . . . 62
2.3.1 Prise en compte des erreurs de forme . . . 62
2.3.2 Élaboration du design final du microscope . . . 66
2.3.2.1 Ajustement du cahier des charges . . . 66
2.3.2.2 Choix de l'ouverture numérique et optimisation du schéma optique . . . 67
2.3.2.2.1 Optimisation du design avec une ouverture numérique $ON_{obj} = 0{,}15$ . . . 67
2.3.2.2.2 Optimisation du design avec une ouverture numérique $ON_{obj} = 0{,}3$ . . . 70
2.3.2.2.3 Synthèse et mise aux calibres de la solution choisie . . . 71
2.3.2.3 Tolérancement . . . 72
2.3.3 Récapitulatif du design choisi . . . 77

3 Revêtements multicouches de très faible période **79**
3.1 Fabrication et caractérisation de revêtements multicouches . . . 79
3.1.1 Fabrication des revêtements multicouches au Laboratoire Charles Fabry . . . 79
3.1.1.1 Dépôt par pulvérisation cathodique magnétron . . . 80
3.1.1.1.1 Principe du dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique . . . 80
3.1.1.1.2 Le bâti de pulvérisation cathodique du LCF (Plassys MP800S) 81
3.1.1.2 Dépôt par pulvérisation ionique . . . 84
3.1.1.2.1 Principe de la pulvérisation par faisceau d'ions . . . 84
3.1.1.2.2 La machine de pulvérisation ionique du LCF (bâti IBS) . . . 84
3.1.2 Métrologie des revêtements multicouches . . . 85
3.1.2.1 Réflectométrie à rayons X . . . 85

3.1.2.1.1 Réflectométrie en incidence rasante avec une source Cu Kα (Bruker D8 Discover) . . . 86
3.1.2.1.2 Réflectométrie sur ligne de lumière synchrotron . . . 87
3.1.2.1.3 Analyse des résultats . . . 90
3.1.2.2 Microscopie électronique . . . 92
3.1.2.3 Microscopie à force atomique . . . 93
3.2 Étude de revêtements multicouches en Cr/B_4 C . . . 94
3.2.1 Présentation de l'étude . . . 94
3.2.1.1 Contexte . . . 94
3.2.1.2 Liste des échantillons déposés et paramètres utilisés . . . 94
3.2.2 Analyse en réflectivité des échantillons . . . 95
3.2.2.1 Mesure de la réflectivité en incidence rasante à 8 keV . . . 95
3.2.2.2 Mesure de la réflectivité à basse énergie . . . 98
3.2.3 Analyse en microscopie électronique . . . 100
3.2.4 Mesures proches du seuil $L_{2,3}$ du Cr . . . 104
3.2.5 Conclusion . . . 107
3.3 Étude de revêtements multicouches pour la fenêtre de l'eau . . . 107
3.3.1 Contexte de l'étude . . . 107
3.3.2 Optimisation des revêtements multicouches pour la fenêtre de l'eau . . . 107
3.3.2.1 Multicouches Cr/Sc . . . 108
3.3.2.2 Ajout de B_4C aux interfaces . . . 110
3.3.2.3 Nitruration du chrome . . . 113
3.3.2.4 Combinaison des deux méthodes d'optimisation . . . 114
3.3.2.5 Modélisation des échantillons . . . 115
3.3.3 Conclusion sur l'étude . . . 119

4 Vers la réalisation et la métrologie des composants 121
4.1 Fabrication et métrologie des surfaces optiques pour le microscope . . . 121
4.1.1 Fabrication des surfaces optiques au LCF . . . 121
4.1.1.1 Superpolissage manuel à la poix à l'atelier d'optique . . . 121
4.1.1.2 Érosion ionique . . . 123
4.1.2 Métrologie des surfaces optiques . . . 124
4.1.2.1 Mesure de forme par interférométrie en lumière visible . . . 124
4.1.2.2 Mesure de la rugosité . . . 128
4.1.3 Fabrication et métrologie des miroirs pour le Schwarzschild . . . 129
4.1.3.1 Cahier des charges pour le polissage des surfaces optiques . . . 130
4.1.3.2 Résultats : les miroirs primaires et secondaires . . . 133
4.1.3.2.1 Résultats pour les substrats du miroir primaire . . . 133
4.1.3.2.2 Résultats pour les substrats du miroir secondaire . . . 136
4.1.3.2.3 Conclusion sur la fabrication des surfaces optiques . . . 138
4.2 Mécanique pour le montage et la tenue du microscope . . . 140
4.2.1 Tenue du microscope . . . 140
4.2.2 Collage des miroirs sur leur support . . . 142
4.2.3 Réglage de l'objectif de Schwarzschild . . . 143

4.3 Revêtements multicouches pour le microscope X dans la fenêtre de l'eau 144
4.3.1 Design des revêtements multicouches 144
4.3.2 Tolérances sur les dépôts 148
4.3.3 En pratique 152
4.4 Bilan sur l'objectif de Schwarzschild 154

Conclusion et perspectives **155**

Bibliographie **159**

Liste des tableaux

Chapitre 1

1.1 Exemples de seuils d'absorption et de raies d'émission pour quelques éléments. Les raies indiquées sont définies dans la Figure 1.8. Source : [Thompson2009] 13
1.2 Longueur d'atténuation et constantes optiques pour quelques matériaux à différentes énergies de photon. 16
1.3 Quelques techniques de microscopie et leurs caractéristiques 36

Chapitre 2

2.1 Principales caractéristiques de quelques détecteurs pour la fenêtre de l'eau 42
2.2 Récapitulatif du cahier des charges. 43
2.3 Valeurs calculées des paramètres principaux du Schwarzschild 48
2.4 Paramètres de systèmes à trois miroirs en fonction de la distance $\overline{AC}$ et du grandissement g_3 du miroir M_3 51
2.5 Systèmes testés en fonction des valeurs de g_{Schw} et $\overline{AC}$ 52
2.6 Flux total sur le détecteur, flux sur le détecteur par pixel et durée de remplissage du puits du détecteur en fonction de la réflectivité par miroir 54
2.7 Quelques exemples de caméras fonctionnant dans le visible. 58
2.8 Bilan radiométrique pour un design avec conversion des photons X en lumière visible pour deux grandissements du Schwarzschild ($g_{Schw} = -20$ et -30) 60
2.9 Résolution estimée pour les différents jeux de déformations 65
2.10 Récapitulatif du cahier des charges adapté. 67
2.11 Estimation du diamètre des miroirs d'après les calculs paraxiaux. 68
2.12 Rayon de courbure et diamètre des miroirs du Schwarzschild et des calibres disponibles. 72
2.13 Rayons des taches images et résolution objet correspondante (en nm) pour différents points du champ pour le Schwazrschild mis aux calibres et optimisé. 72
2.14 Tolérances calculées pour le Schwarzschild en utilisant la position de l'image comme variable compensatrice (*comp. = compensateur/variable compensatrice*). 74
2.15 Tolérances calculées pour le Schwarzschild en utilisant la position de l'objet comme variable compensatrice (*comp. = compensateur/variable compensatrice*). 75
2.16 Résolution calculée (rayon contenant 84% de l'énergie de la tache) dans le plan image et le plan objet pour le système nominal et deux systèmes perturbés. 76

Chapitre 3

3.1 Liste des échantillons Cr/B_4C étudiés et leurs épaisseurs visées 95
3.2 Constantes optiques des matériaux utilisées pour les simulations. 95

3.3 Paramètres des multicouches Cr/B_4C utilisés pour les simulations 97
3.4 Liste des échantillons Cr/Sc pur étudiés. 108
3.5 Réflectivité maximale mesurée pour les échantillons Cr/Sc mesurés au synchrotron SOLEIL. 109
3.6 Liste des échantillons $Cr/B_4C/Sc$ et $B_4C/Cr/Sc$ étudiés (*mes.* = mesurée). 110
3.7 Réflectivités maximales mesurées pour les échantillons $Cr/B_4C/Sc$ (MP15004 et MP15007) et $B_4C/Cr/Sc$ (MP15008). 112
3.8 Liste des échantillons CrN_x/Sc étudiés. 113
3.9 Liste des échantillons $CrN_x/B_4C/Sc$ étudiés (*mes.* = mesurée). 115
3.10 Épaisseurs et rugosités ajustées pour les échantillons MP14083, MP15069, MP15084, MP15086 et MP15087. Les épaisseurs (ép.) et rugosités (σ) sont données en nm. . . . 117

Chapitre 4

4.1 Caractéristiques techniques du profilomètre hétérodyne Zygo 5500 129
4.2 *Total Integrated Scatter* calculé à la longueur d'onde d'utilisation du microscope et pour différentes valeurs de la rugosité RMS σ_R de la surface et pour différentes valeur de l'angle d'incidence ϕ. 132
4.3 Forme et rugosité mesurées sur les substrats pour le miroir primaire 135
4.4 Rayon de courbure mesuré des substrats pour le miroir primaire (précision : $\pm$ 3 μm). 135
4.5 Forme et rugosité mesurées sur les substrats pour le miroir secondaire avant débordage 137
4.6 Forme et rugosité mesurées sur les substrats pour le miroir secondaire après débordage 139
4.7 Récapitulatif des caractéristiques du Schwarzschild. 145

Table des figures

Chapitre 1

1.1 Schéma des notations utilisées pour le champ et l'ouverture d'un système optique S.O. 5
1.2 Fonctions d'Airy pour (a) un point unique (b) deux points proches (en rouge : la fonction d'Airy pour les deux points séparément ; en bleu : l'intensité totale due aux deux points) 7
1.3 Fonction de Transfert de Modulation pour un système optique idéal tracée en fonction du quotient entre la fréquence spatiale ν et la fréquence de coupure ν_c. 8
1.4 Définition de l'écart normal Δ pour un système optique produisant un front d'onde aberrant $S_{réel}$. La surface $S_{référence}$ correspond à la surface de référence qui serait produite par un système optique équivalent dénué d'aberration. 9
1.5 Représentation d'une surface optique avec quelques grandeurs associées. 10
1.6 Spectre électromagnétique – Région des courtes longueurs d'onde 11
1.7 Schéma simplifié des différents niveaux énergétiques d'un atome, et les seuils d'absorption et raies d'émission associés. 12
1.8 Schéma des différents niveaux énergétiques d'un atome et des raies d'émission associées. 13
1.9 Longueur d'absorption de l'eau et du carbone, et contraste d'absorption en fonction de l'énergie de photons 17
1.10 Réfraction et réflexion totale externe dans le domaine XUV. 18
1.11 Représentation d'une lentille à zones de Fresnel 18
1.12 Représentation très schématique des différentes étapes de fabrication d'une lentille à zones de Fresnel (vue transverse). Les zones bleu grisé représentent les portions de polymère éclairées par le faisceau d'électrons. En bleu clair : le polymère non éclairé ; en jaune : le matériau pour les zones absorbantes de la lentille à zones de Fresnel. . . . 20
1.13 Réflectivité en fonction du rapport angle de rasance θ sur angle critique θ_c, pour différentes valeurs du rapport β/δ. *D'après [Attwood1999]* 21
1.14 Schéma de fonctionnement d'un revêtement multicouche 22
1.15 Réflectivité en incidence normale reportée dans la littérature pour différents types de composants en fonction de la gamme spectrale (en énergie de photons et en longueur d'onde). Source : [Attwood1999]. Les revêtements multicouches sont représentés par des points pour des longueurs d'onde comprises entre 1 nm et 15 nm. 23
1.16 Schéma du microscope XM-1, installé sur la ligne de lumière 6.1.2 de l'ALS. Source : Site internet du CXRO (`http://www.cxro.lbl.gov`) 26
1.17 Simulation de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence pour une multicouche $[Cr/Sc]_{20}$ à une énergie de 8,05 keV. 30

1.18 Simulation de la saturation d'un revêtement multicouche Cr/Sc : réflectivité maximale d'une multicouche Cr/Sc en fonction de son nombre de périodes. La réflectivité est simulée pour un angle d'incidence de 13,5° et la réflectivité pic est mesurée à une énergie de photons de 397,8eV environ. 31

1.19 Schéma des modèles d'interfaces : (a) interface idéale (b) interface avec de la rugosité (c) interface avec de l'interdiffusion. 31

1.20 Simulation de la rugosité et de l'interdiffusion pour une multicouche Cr/Sc 33

Chapitre 2

2.1 Schéma de principe du microscope. 39

2.2 Détermination de la longueur d'onde d'utilisation 41

2.3 Un exemple de système optique défini par une séquence de plusieurs surfaces. 44

2.4 Schéma d'un objectif de Schwarzschild et des notations utilisées. 46

2.5 Schéma du système à trois miroirs et les notations utilisées. 48

2.6 Schéma du dispositif à trois miroirs et les notations utilisées pour l'inclinaison du troisième miroir. 50

2.7 Fraction de l'énergie totale de la tache image contenue dans un cercle de rayon variable (en abscisse) pour un point au centre du champ imagé par un système à trois miroirs dont le grandissement du Schwarzschild est de -20 et la distance $\overline{AC}$ de 60 mm. 52

2.8 Schéma du dispositif à trois miroirs et des notations utilisées pour le bilan radiométrique. 53

2.9 Spectre d'émission et d'absorption (en haut à droite) du YAG:Ce. Source : `crytur.cz` 55

2.10 Choix possibles pour la forme du scintillateur : (a) lame à faces parallèles (b) demi-boule (c) portion de boule utilisée à ses points d'Young-Weierstrass. 56

2.11 Schéma du système avec conversion des rayons X en lumière visible. 56

2.12 Schéma du dispositif à trois miroirs et des notations utilisées pour le bilan radiométrique. 58

2.13 Flux reçu par pixel en fonction de la réflectivité par miroir pour plusieurs schémas optiques (schéma à trois miroirs, schémas avec conversion des rayons X en lumière visible pour trois valeurs du grandissement du Schwarzschild : $-15{,}1$, -20 et -30). . . 61

2.14 Cartographie de la surface mesurée par interférométrie visible d'un substrat de diamètre 54 mm. L'amplitude pic-vallée mesurée est de 7,2 nm et l'amplitude RMS de 1,073 nm. 62

2.15 Les premiers polynômes de Zernike. 63

2.16 (a) Coefficients de Zernike de la surface mesurée pour les 28 premiers polynômes de Zernike (en bleu) et les 561 premiers polynômes de Zernike (en rouge) (b) Surface simulée d'après la décomposition sur les 28 premiers polynômes de Zernike (c) Surface simulée d'après la décomposition sur les 561 premiers polynômes de Zernike. 64

2.17 Définition et schéma du Schwarzschild optimisé utilisé pour calculer la résolution atteignable. 65

2.18 Exemples de déformations générées pour le miroir primaire. 66

2.19 Définition et schéma du Schwarzschild optimisé avec un grandissement $|g_{Schw}| = 20$ et une ouverture numérique objet $ON_{obj} = 0{,}15$. Les longueurs sont exprimées en mm, sauf la longueur d'onde (en μm). 69

2.20 Performances attendues du Schwarzschild sans erreurs de forme : (a) front d'onde calculé pour trois points du champ (de gauche à droite : en bord de champ, au champ intermédiaire et sur l'axe) (b) Rayon de la tache calculée dans le plan image et résolution associée dans le plan objet du Schwarzschild pour ces trois points du champ. 69
2.21 Définition et schéma du Schwarzschild optimisé avec un grandissement $|g_{Schw}| = 20$ et une ouverture numérique objet $ON_{obj} = 0{,}3$. Les longueurs sont exprimées en mm, sauf la longueur d'onde (en μm). 71
2.22 Performances attendues du Schwarzschild sans erreurs de forme : (a) front d'onde calculé pour trois points du champ (de gauche à droite : en bord de champ, au champ intermédiaire et sur l'axe) (b) Rayon de la tache calculée dans le plan image et résolution associée dans le plan objet du Schwarzschild pour ces trois points du champ. 71
2.23 Schéma du Schwarzschild après la mise aux calibres. 72
2.24 Illustration de l'interstice et du décentrement. 74
2.25 (a) Probabilité cumulée en fonction de la variation de la fonction d'erreur calculée pour 200 systèmes (b) Répartition des systèmes calculés en fonction de l'écart en leur fonction d'erreur et la fonction d'erreur du système nominal. 76

Chapitre 3

3.1 Principe de fonctionnement de la pulvérisation cathodique 80
3.2 Présentation de la machine de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron MP800. 82
3.3 (a) Profils d'uniformité mesurés (points) et simulés (traits) pour différents pourcentages de changement de vitesse pour une multicouche Mo/Si (b) Profil de variation de vitesse utilisé. 83
3.4 Présentation de la machine de dépôt par pulvérisation ionique IBS. 85
3.5 Présentation du réflectomètre X rasant du laboratoire. 86
3.6 Schéma de principe d'un synchrotron. 87
3.7 Schéma de la branche XUV de la ligne Métrologie 88
3.8 Vue de l'intérieur du réflectomètre de la branche XUV de la ligne Métrologie à SOLEIL 89
3.9 Principe des mesures sur ligne de lumière synchrotron 89
3.10 Schéma de la ligne de lumière 6.3.2 de l'*Advanced Light Source* (ALS). 90
3.11 Interface graphique du logiciel IMD et un exemple de courbe de réflectivité simulée. . 91
3.12 Schéma simplifié de la démarche d'analyse des courbes de réflectivité. 92
3.13 Courbes de réflectivité mesurée et simulée en réflectométrie X rasants à 8 keV pour l'échantillon MP14031, MP14032 et IO1414 96
3.14 Schéma des modèles utilisés pour les multicouches Cr/B_4C 97
3.15 Mesure de la réflectivité obtenues au synchrotron SOLEIL pour trois échantillons Cr/B_4C 99
3.16 Juxtaposition pour l'échantillon MP14031 d'une image TEM en champ clair de grandissement 64K et d'une image STEM de grandissement 320K 101
3.17 Juxtaposition pour l'échantillon MP14032 d'une image TEM en haute résolution de grandissement 180K et d'une image STEM de grandissement 900K 102
3.18 Profils superposés d'images TEM et d'images STEM pour l'échantillon MP14031 . . . 103
3.19 Profils superposés de l'image TEM de grandissement 180K et de l'image STEM de grandissement 900K de l'échantillon MP14032 103

3.20 Réflectivité en fonction de l'énergie pour l'échantillon MP14031 à un angle de rasance variant de 8,6° à 9,6°, mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS. 104
3.21 Réflectivité en fonction de l'énergie pour l'échantillon MP14031 à un angle de rasance de 9,2°, mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS 105
3.22 Réflectivité en fonction de l'angle de rasance mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS à 600 eV 106
3.23 Réflectivité en fonction de l'angle de rasance mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS à 572,9 eV 106
3.24 Réflectivité mesurée pour différents échantillons Cr/Sc : MP14081, MP14082, MP14083 et MP14084. 109
3.25 Réflectivité mesurée en fonction de l'angle de rasance à une énergie de 320 eV pour les échantillons $[Cr/Sc]_{100}$ (MP14083 ; en rouge), $[Cr/Sc]_{200}$ (MP15002 ; en vert) et $[Cr/Sc]_{400}$ (MP15006 ; en bleu). 110
3.26 Schéma des échantillons contenant des couches barrières en B_4C : (a) échantillon $Cr/B_4C/Sc$ (b) échantillon $B_4C/Cr/Sc$. 111
3.27 Réflectivité en fonction de l'angle de rasance mesurée à 8 keV pour différents échantillons $B_4C/Cr/Sc$ et un échantillon Cr/Sc. 111
3.28 Réflectivité mesurée en fonction de l'énergie de photon pour les échantillons MP14081, MP15004, MP15007 et MP15008. L'angle de rasance utilisé pour la mesure de chaque échantillon est indiqué dans la figure. 112
3.29 Réflectivité mesurée en fonction de l'énergie de photon pour les échantillons MP14081, MP15007, MP15013 et MP15015. L'angle de rasance utilisé pour la mesure de chaque échantillon est indiqué dans la figure. 114
3.30 Réflectivité mesurée en fonction de l'angle de rasance à 398 eV pour les échantillons MP15069, MP15071, MP15072 et MP15089 115
3.31 Réflectivité pic mesurée à une énergie de photons de 398 eV en fonction du nombre de périodes pour les échantillons $[CrN_x/Sc]$ en bleu et $[CrN_x/B_4C/Sc]$ en rouge. L'angle de rasance du sommet du pic mesuré est indiqué à côté du point correspondant. 116
3.32 Réflectivité en fonction de l'angle de rasance à 8,05 keV pour l'échantillon MP15087 . 117
3.33 Réflectivité en fonction de l'angle de rasance à 397 eV pour des revêtements CrN_x/Sc et $CrN_x/B_4C/Sc$ 118

Chapitre 4

4.1 (a) Polissage à la poix d'une surface optique, et (b) visualisation des franges d'interférence entre une surface et le calibre associé. 122
4.2 La débordeuse : la pièce à déborder (voir le détail à droite) est collée sur un support (absent de la photographie) placé à l'extrémité du mandrin. 123
4.3 Le bâti d'érosion ionique : (a) schéma de principe (b) photo de la machine. 124
4.4 Schéma de l'interféromètre de Fizeau à décalage de phase. Source : [Picart1995] 125
4.5 Photo de l'interféromètre de Fizeau : (a) laser avec la mise en forme du faisceau (à droite), et détection des franges après la lame séparatrice (à gauche) (b) banc pour accueillir la référence et l'échantillon à mesurer. 125
4.6 Schéma de principe du contrôle de surfaces sphérique à l'interféromètre (détail sur l'ensemble {référence + échantillon}) : (a) mesure d'une surface concave (b) mesure d'une surface convexe 126

4.7 Carré de (a) la forme RMS et (b) la pente RMS en fonction de $8/N$ pour un miroir. . 127
4.8 Schéma du procédé de mesure du rayon de courbure d'une surface 128
4.9 Montage de mesure de la rugosité (a) du miroir primaire (b) du miroir secondaire (le miroir secondaire a été mesuré avant débordage et était placé dans la monture en laiton). 129
4.10 Forme du miroir secondaire M_2. 131
4.11 Schéma des miroirs à fabriquer par l'atelier d'optique. 131
4.12 Forme RMS mesurée en fonction du temps pour les substrats dédiés : (a) au miroir primaire, et (b) au miroir secondaire. 133
4.13 Surface mesurée des substrats : (a) P1, (b) P2, (c) P3, (d) P4 et (e) P5. La surface est affichée pour un diamètre compris entre 36 mm et 84 mm. 134
4.14 Surface mesurée des substrats : (a) S1, (b) S2, (c) S3, (d) S4, (e) S5, (f) S6 et (g) S7. La surface est affichée pour un diamètre compris entre 7,6 mm et 17,32 mm. 136
4.15 Profil moyens des deux échantillons : (a) avant polissage de la tranche, (b) après polissage. Le substrat n°2 est celui dont la face arrière a été dépolie. 138
4.16 Surface mesurée des substrats : (a) S1, (b) S2, (c) S3, (d) S4, (e) S5 et (f) S6. La surface est affichée pour un diamètre compris entre 7,6 mm et 17,32 mm. Le septième substrat S7 n'est pas représenté car l'étape de débordage a malheureusement échoué pour lui. . 139
4.17 Front d'onde obtenu en sortie du Schwarzschild contenant les défauts de forme de P1 pour le miroir primaire et de S1 pour le miroir secondaire. 140
4.18 Vue en coupe du dispositif de tenue du Schwarzschild. 141
4.19 Dispositif mécanique pour le collage (a) des pattes du miroir primaire (b) de l'araignée du miroir secondaire. 143
4.20 Notations utilisées pour le calcul des angles d'incidence sur les miroirs. 144
4.21 Angles d'incidence sur les miroirs primaire et secondaire en fonction de la hauteur d'impact sur le miroir dans la zone utile. 146
4.22 Position du pic de réflectivité en fonction de celle donnée par la loi de Bragg corrigée. 147
4.23 Période en fonction de la hauteur d'impact sur : (a) le miroir primaire, et (b) le miroir secondaire. 148
4.24 Réflectivité mesurée à 398 eV pour un revêtement $CrN_x/B_4C/Sc$ à 400 périodes. . . . 149
4.25 Période en fonction de la hauteur d'impact sur : (a) le miroir primaire, et (b) le miroir secondaire, et les tolérances associées (en pointillés) correspondant à une variation de la réflectivité de 50%. 149
4.26 Optimisation de la période pour le revêtement multicouche du miroir primaire en maximisant l'intégrale $\mathcal{R}$ 150
4.27 Réflectivité simulée avec la période calculée de sorte à maximiser la réflectivité sur l'ensemble de la zone utile du miroir primaire. 150
4.28 Simulation de l'uniformité des couches déposées sur le miroir primaire 152
4.29 Simulation de l'uniformité des couches déposées sur le miroir secondaire 153

Introduction

Quelles sont les origines de la microscopie ? Il n'est pas facile de donner une date précise de l'invention du microscope, la curiosité de l'Homme l'ayant toujours poussé à vouloir découvrir l'infiniment petit. Les premières tentatives pour observer des objets non résolvables à l'œil nu semblent dater de l'Antiquité. Une première lentille a été découverte en Irak en 1845 : datant de -700 avant JC, il s'agit d'un disque plan convexe en cristal de roche poli, dont l'usage reste néanmoins controversé [1]. Bien que l'utilisation pour l'optique de cette lentille soit mis en doute, on sait que des lentilles étaient véritablement utilisées pour l'optique en tant que loupe durant l'Antiquité, notamment pour cautériser des plaies en focalisant la lumière du Soleil [Vignaux2009]. Au XI^{e} siècle, le physicien égyptien Alhazen mentionne le pouvoir grossissant des lentilles plan-convexes. Il faudra attendre la fin du XIII^{e} siècle et les travaux du moine anglais Bacon pour utiliser des lentilles en verre en tant que loupe. Bacon les utilisera principalement comme lunettes pour aider à la lecture, mais ses travaux auront posé les principes utilisables pour la future microscopie. Les premiers microscopes « simples » (contenant une seule lentille) ou « composés » (contenant un oculaire et un objectif) sont rapidement développés. On peut noter le développement d'un premier microscope en 1590 par Hans Jansen et son fils Zacarie (opticiens lunetiers de métier), puis par Galilée en 1609, Robert Hooke, qui publia en 1667 un traité intitulé *Micrographia*, et Antoni Van Leeuwenhoek. Ce dernier, souvent désigné comme étant le véritable inventeur de la microscopie, a mis au point une méthode de polissage des lentilles donnant lieu à des qualités de surfaces alors inégalées. Ses recherches lui ont permis de faire une multitude d'observations sur des échantillons biologiques, ce qui a popularisé la microscopie. Dès lors, de grands noms de la physique s'y sont intéressés, surtout à partir du XIX^{e} siècle, durant lequel le microscope a pu progressivement être corrigé des aberrations chromatiques et géométriques, lui permettant actuellement d'atteindre des résolutions limitées par la diffraction de l'ordre de quelques centaines de nanomètres.

L'histoire de la microscopie ne s'arrête pas là. Les recherches ne cessent de se poursuivre et prennent actuellement des chemins très diversifiés : à partir du XX^{e} siècle, on a vu le développement d'une grande variété de nouvelles techniques de microscopie, telles que la microscopie à contraste de phase (qui a valu le prix Nobel à Zernike en 1934), la microscopie confocale, la microscopie électronique, la microscopie en champ proche (prix Nobel de physique en 1986 pour G. Binnig et H. Rohrer), et plus récemment différentes techniques de microscopie à superrésolution (prix Nobel de chimie en 2014 pour E. Betzig, S. Hell et W. Moerner). Depuis son invention, le microscope (quelle que soit sa forme) a permis des découvertes scientifiques majeures, notamment pour la biologie : découverte de la cellule et de ses composants principaux, de l'ADN, des agents pathogènes... Il reste encore de nombreuses

1. Voir le site internet du British Museum : `http://www.britishmuseum.org/research/collection_online/collection_object_details.aspx?assetId=396842001&objectId=369215&partId=1`

choses à comprendre en biologie, par exemple sur le fonctionnement des cellules et les mécanismes du vivant. Pour cela, il est clair à présent qu'une technique de microscopie seule ne suffit pas pour obtenir les réponses aux questions des biologistes, qui ont besoin de l'imagerie à très haute résolution, mais aussi l'imagerie rapide, en trois dimensions ou multimodale permettant de mettre en évidence plusieurs molécules simultanément par exemple. Ainsi, chaque méthode peut apporter son propre type de réponse, et la corrélation d'images obtenues par différentes techniques peut mettre en lumière de nouvelles informations.

Dans ce cadre, la microscopie à rayons X a tout à fait sa place. Les premiers microscopes à rayons X sont nés dans la deuxième moitié du XX^{e} siècle, soit relativement tôt après la découverte des rayons X par Wilhelm Röntgen en 1895. Il est rapidement apparu que les rayons X étaient de bons candidats pour réaliser de l'imagerie médicale ou pour la biologie : la radiologie est née quelques mois seulement après la découverte des rayons X. Il a rapidement été découvert que les rayons X sont du rayonnement électromagnétique de courte longueur d'onde (entre quelques nanomètres et quelques dixièmes de nanomètre) ce qui donne accès à une haute résolution théorique, la résolution étant proportionnelle à la longueur d'onde. Elle apporterait également un contraste propre pour l'observation d'échantillons biologiques : dans une gamme spectrale particulière des rayons X, correspondant à une longueur d'onde entre 2,4 nm et 4,4 nm, appelée « fenêtre de l'eau », le contraste d'absorption entre l'eau (principal composant des cellules biologiques) et le carbone (contenu dans les membranes, protéines, etc.) est naturellement élevé. Ce contraste naturel permettrait de distinguer les structures composant la cellule, sans besoin d'ajouter de colorant ou de marqueur particulier potentiellement nocif pour la cellule. La microscopie X pourrait donc apporter des informations intéressantes à corréler avec des images issues d'autres techniques de microscopie.

Ces dernières années, plusieurs groupes de recherche dans le monde ont développé leur propre microscope X dans la fenêtre de l'eau. La plupart de ces microscopes utilisent des composants diffractifs (lentilles à zones de Fresnel) pour focaliser les rayons X. Un inconvénient est la courte distance (de l'ordre du millimètre) que ces composants nécessitent entre l'échantillon à observer et l'objectif d'imagerie. L'installation de l'échantillon, placé dans un cryostat, n'est donc pas très confortable. Cette distance peut être augmentée (quelques centimètres) en utilisant un objectif à miroirs.

La réalisation d'un tel objectif est cependant loin d'être simple. En raison de la très courte longueur d'onde, de nombreux problèmes apparaissent :

— forte sensibilité à des défauts de forme nanométriques sur les surfaces optiques ;

— forte sensibilité aux rugosités des surfaces ;

— réalisation de traitements réfléchissants efficaces : à cette longueur d'onde et en incidence proche de la normale, on doit utiliser des revêtements multicouches à épaisseur sub-nanométrique.

Dans cette thèse, on se propose de trouver des réponses aux différents verrous technologiques qui se placent sur le chemin de la fabrication d'un microscope X à miroirs en incidence normale pour la fenêtre de l'eau.

Le Chapitre 1 sera l'occasion de nous plonger dans l'univers de l'imagerie à rayons X. Nous présenterons dans un premier temps les principes fondamentaux de l'imagerie en optique puis nous nous intéresserons plus en détail au domaine spectral particulier des rayons X. Nous présenterons quelques systèmes optiques utilisant le rayonnement X ou ultraviolet (UV), notamment les systèmes de litho-

graphie dans le domaine du rayonnement extrême UV qui a été un des moteurs du développement des systèmes optiques X et UV à miroirs. Nous présenterons également un état de l'art actuel de la microscopie à rayons X. Les spécificités de cette gamme spectrale font que les composants optiques utilisés pour l'imagerie sont généralement des composants diffractifs (lentilles à zones de Fresnel) ou réflectifs (miroirs à revêtements multicouches). Aussi, le principe de fonctionnement des revêtements multicouches sera détaillé dans ce chapitre, ainsi qu'un état de l'art actuel des revêtements multicouches à faibles périodes pour les rayons X mous.

Le Chapitre 2 concerne la mise en place du schéma optique du microscope. Pour cela, nous étudions et comparons plusieurs familles de schémas possibles, basées sur un objectif de Schwarzschild composé de deux miroirs sphériques concentriques. Cette comparaison permettra de choisir la famille répondant au mieux au cahier des charges. Nous verrons ensuite qu'en raison de la courte longueur d'onde d'utilisation, des écarts, même faibles, à une sphère parfaite pour les substrats des miroirs provoquent une rapide détérioration de la résolution du système optique. Le cahier des charges a donc été modifié en conséquence. Nous présenterons enfin la phase d'optimisation et de tolérancement pour aboutir au schéma optique final compte tenu de ce nouveau cahier des charges.

Dans le Chapitre 3, nous nous intéresserons aux revêtements multicouches à très faible période. Nous présenterons les moyens expérimentaux de fabrication et métrologie utilisés dans ce cadre. Différentes études de revêtements multicouches à faible période ont été effectuées. Nous présenterons en premier lieu une étude concernant des revêtements contenant du chrome (Cr) et du carbure de bore (B_4C), pour lesquels un intérêt particulier a été porté sur la compréhension du comportement des matériaux aux interfaces. Nous poursuivrons ce chapitre par la présentation d'une étude de revêtements à faible période pour la fenêtre de l'eau contenant du chrome et du scandium. Cette étude aboutira au choix du design du revêtement qui sera utilisé pour le microscope.

Enfin, le Chapitre 4 décrira les différents développements réalisés en vue de la fabrication du microscope. Dans un premier temps, on présentera les techniques de fabrication et de métrologie disponibles au laboratoire, ainsi que les résultats qui ont été obtenus. Le schéma mécanique de tenue de l'objectif, tel que conçu par l'atelier de mécanique, sera ensuite présenté. Enfin, nous aborderons la finalisation du design des revêtements multicouches pour tenir compte des spécificités géométriques des substrats et du dépôt.

Chapitre 1

Formation des images dans le domaine des rayons X

1.1 Imagerie dans le domaine des rayons X

La réalisation d'un système optique complexe, tel qu'un microscope, est un long processus qui nécessite une bonne maitrise des bases de l'imagerie. Après une brève introduction des principes utiles pour la conception d'un système optique, nous présenterons ici la gamme spectrale des rayons X et ses spécificités optiques, puis mentionnerons quelques exemples de systèmes optiques à rayons X.

1.1.1 Rappels théoriques sur l'imagerie

1.1.1.1 Grandeurs principales

Dans cette partie, nous allons introduire les grandeurs principales pour définir un système optique. Les différentes notions mentionnées ici sont détaillées dans quelques ouvrages de référence, tels que [Born1980, Hecht2002]. La suite est valable quelle que soit la longueur d'onde, que l'on notera λ dans ce document. On considère un système optique *S.O.*, représenté en Figure 1.1. On définit l'axe optique de ce système optique par son axe de symétrie de rotation (droite (AA') sur la Figure 1.1). Le système optique dispose d'une pupille qui va limiter les rayons lumineux. On définit la pupille d'entrée PE par l'image de la pupille dans l'espace objet et la pupille de sortie PS est l'image de la pupille dans l'espace image (PS est donc l'image de PE par le système optique). Ce système optique a une distance focale f' et est utilisé pour une certaine conjugaison d'un point objet A vers un point image A'.

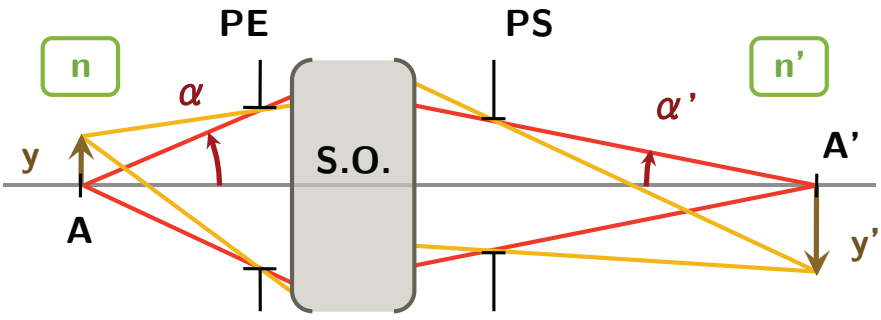


Figure 1.1 – Schéma des notations utilisées pour le champ et l'ouverture d'un système optique S.O.

On définit le *champ* par l'ensemble des points hors de l'axe optique dont on veut faire l'image

par le système optique. Le champ maximal objet sera noté y et le champ maximal image sera noté y' (voir Figure 1.1). Le rapport entre y' et y est le *grandissement* g_y du système optique pour cette conjugaison :

$$g_y = \frac{y'}{y} \tag{1.1}$$

Le grandissement est entièrement défini par la conjugaison ; autrement dit, pour un grandissement g_y, il existe un unique couple de point A et A' conjugués pour lesquels le grandissement sera g_y.

On définit l'*ouverture numérique* respectivement objet ON_{obj} ou image ON_{img} par le produit suivant :

$$ON_{obj} = n \times \sin\alpha \tag{1.2a}$$

$$ON_{img} = n' \times \sin\alpha' \tag{1.2b}$$

où :

— α et α' sont les angles d'ouverture objet et image :

  — α est l'angle que fait le rayon passant par le point objet sur l'axe A et le bord de la pupille d'entrée, par rapport à l'axe optique ;

  — α' est l'angle que fait le rayon passant par A' et le bord de la pupille de sortie, par rapport à l'axe optique ;

— n et n' sont les indices de réfraction respectivement côté objet et image.

Le système optique est dit *stigmatique* pour la conjugaison $A \to A'$ si l'image du point A est un point (A'). De plus, le système optique est *aplanétique* si la condition de stigmatisme est également vraie au voisinage du point A dans un plan perpendiculaire à l'axe optique. On peut alors écrire la relation des sinus d'Abbe :

$$ny \sin\alpha = n'y' \sin\alpha' \tag{1.3}$$

Il y a donc un lien entre l'ouverture numérique objet et image :

$$ON_{img} = \frac{1}{g_y} \times ON_{obj} \tag{1.4}$$

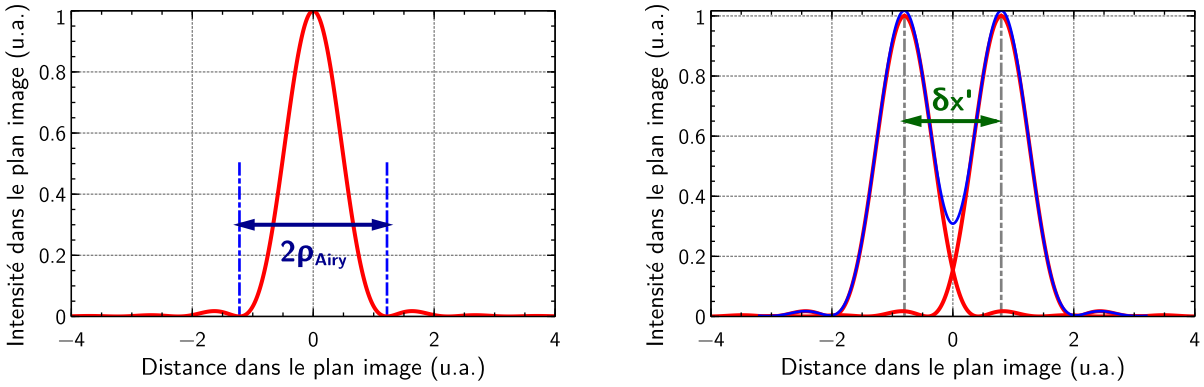
Dans le cas où le système optique étudié est parfait, l'image d'un point ne sera pas strictement un point car il faut tenir compte de la diffraction. L'image d'un point correspond à la *Réponse Percussionnelle*, ou *Point Spread Function* en anglais (PSF, *fonction d'étalement du point*). Dans le cas d'un éclairage incohérent spatialement, la réponse percussionnelle incohérente RPI correspond au module carré de la transformée de Fourier du champ dans la pupille. Pour un système optique parfait, le front d'onde dans la pupille est parfaitement sphérique ; ne reste alors que la fonction pupille $p(X, Y)$:

$$RPI_0 = |TF\,(p(X, Y))|^2 \tag{1.5}$$

Dans le cas où la pupille de l'instrument est un disque, la réponse percussionnelle incohérente RPI_0 est une fonction d'Airy. Le rayon de la tache d'Airy dans le plan image est alors :

$$\rho_{Airy} = \frac{0.61\lambda}{ON_{img}} \tag{1.6}$$

Ce rayon n'inclut en fait que le premier lobe de la fonction d'Airy (il correspond à la première annulation) ; il est une bonne approximation pour décrire le rayon de la tache car 84% de l'énergie totale



(a) (b)

FIGURE 1.2 – Fonctions d'Airy pour (a) un point unique (b) deux points proches (en rouge : la fonction d'Airy pour les deux points séparément ; en bleu : l'intensité totale due aux deux points)

est comprise dans un disque de rayon ρ_{Airy}. Par analogie, lorsque l'on souhaitera déterminer un rayon de tache, on utilisera le rayon du cercle contenant 84% de l'énergie de la tache.

La *résolution* d'un système optique est liée à la capacité de l'instrument à pouvoir distinguer deux objets proches. D'après le critère de Rayleigh, on peut résoudre les deux objets (i.e. les distinguer) si la distance δx qui les sépare vérifie [1] :

$$\delta x \geq \frac{0.61\lambda}{ON_{obj}} \tag{1.7a}$$

$$\delta x' \geq \frac{0.61\lambda}{ON_{img}} \tag{1.7b}$$

Une définition alternative de la résolution peut être faite en terme de fréquences spatiales. On définit la *Fonction de Transfert de Modulation* (FTM) dans le cas d'un éclairage incohérent par la transformée de Fourier de la réponse percussionnelle. Dans le cas d'un système optique parfait, on peut donner l'expression analytique de sa FTM (voir Figure 1.3) :

$$FTM = \frac{2}{\pi} \times \left(\arccos\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right) - \frac{\nu}{\nu_c} \times \sqrt{1 - \left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2} \right) \tag{1.8}$$

où ν_c est la fréquence de coupure. La FTM est nulle pour toutes les fréquences spatiales supérieures à la fréquence de coupure ν_c qui vaut :

$$\nu_c = \frac{2ON_{img}}{\lambda} \tag{1.9}$$

La résolution [2] est alors la capacité du système optique à transmettre une certaine fréquence spatiale ν. Celle-ci est donc transmise si :

$$\nu < \frac{2ON_{img}}{\lambda} \tag{1.10}$$

1. L'inégalité (1.7b) correspond à l'inégalité (1.7a) écrite dans l'espace image plutôt que l'espace objet.
2. Les deux définitions de la résolution énoncées précédemment donnent des résultats tout à fait semblables. En effet, en écrivant $\nu = \frac{1}{\delta x'_2}$, on obtient via (1.10) que $\delta x'_2 \geq \frac{0.5\lambda}{ON_{img}}$, ce qui est proche de l'inégalité (1.7b).

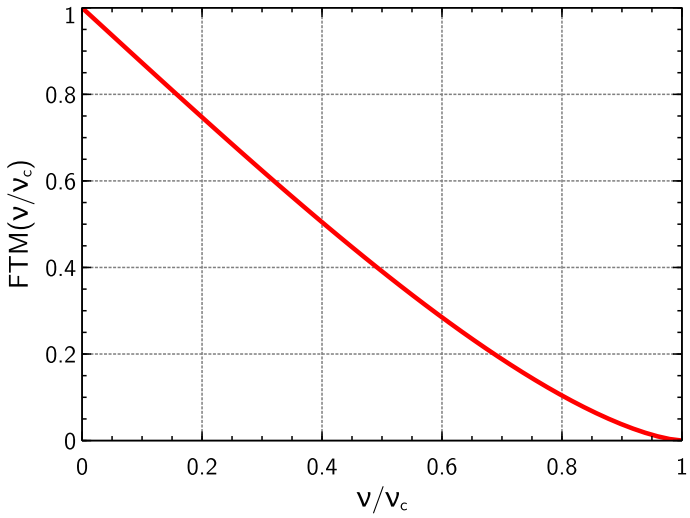


FIGURE 1.3 – Fonction de Transfert de Modulation pour un système optique idéal tracée en fonction du quotient entre la fréquence spatiale ν et la fréquence de coupure ν_c.

1.1.1.2 Les aberrations en optique

Dans la pratique, l'image formée par un système optique est rarement parfaite ; elle peut être entachée d'*aberrations*. Dans ce paragraphe, la théorie des aberrations ne sera pas présentée en détails ; pour une description plus complète, on peut se référer à quelques ouvrages de référence, tels que [Malacara-Hernández2013] ou [Fischer2008].

Les aberrations d'un système optique peuvent être *chromatiques*, c'est-à-dire dépendant de la longueur d'onde d'utilisation, ou *géométriques* qui dépendent uniquement des grandeurs géométriques du système. Ces deux familles peuvent bien entendu exister conjointement.

De manière générale, les aberrations dépendent du champ ainsi que de l'ouverture numérique du système optique. Ainsi, plus l'ouverture numérique et/ou le champ sont grands, plus les aberrations vont être importantes et donc détériorer la qualité de l'image. La qualité d'un système optique peut être quantifiée via son *écart normal* Δ (voir Figure 1.4) : il s'agit de la différence entre le front d'onde réel aberrant en sortie du système optique et d'un front d'onde sphérique parfait de référence. Les différentes aberrations du système optique sont décrites par la décomposition de l'écart normal sur une base de fonctions polynomiales du champ et de l'ouverture [Born1980, Conforti1983].

On distingue plusieurs familles d'aberrations géométriques, suivant leur dépendance avec l'ouverture ou le champ. Par exemple, l'*aberration sphérique* est une aberration qui ne varie pas dans le champ. Lorsqu'elle est absente, l'image d'un point sur l'axe est un point, et le système optique est donc stigmatique. D'autres aberrations courantes sont la coma, l'astigmatisme ou la courbure de champ par exemple.

On peut calculer la réponse percussionnelle pour un système optique aberrant, tenant compte des défauts de phase donné dans l'écart normal :

$$RPI_{réelle} = \left| TF\left[p(X,Y) \times e^{-i\frac{2\pi}{\lambda}\Delta(X,Y)} \right] \right|^2 \tag{1.11}$$

On définit alors le rapport de Strehl comme étant le quotient de la valeur de RPI réelle au centre et la valeur au centre de la RPI idéale (telle que calculée en (1.5)) :

$$R_S = \frac{RPI_{réelle}}{RPI_0} \approx \exp\left(-\frac{4\pi^2}{\lambda^2}\sigma_\Delta^2 \right) \tag{1.12}$$

Figure 1.4 – Définition de l'écart normal Δ pour un système optique produisant un front d'onde aberrant $S_{réel}$. La surface $S_{référence}$ correspond à la surface de référence qui serait produite par un système optique équivalent dénué d'aberration.

où σ_Δ correspond à la moyenne quadratique de l'écart normal Δ. Le rapport de Strehl a du sens dans la limite où les aberrations restent relativement faibles.

Un système optique est dit *limité par la diffraction* lorsque la contribution des aberrations est négligeable devant celle de la diffraction. Afin de vérifier cela, on peut utiliser le critère de Maréchal, qui stipule que pour être en limite de diffraction on doit avoir $R_S \geq 80\%$. De manière équivalente, un système est limité par la diffraction lorsque la moyenne quadratique de l'écart normal σ_Δ vérifie :

$$\sigma_\Delta \leq \frac{\lambda}{14} \tag{1.13}$$

Les considérations précédentes sont valables dans la limite où les aberrations ne sont pas trop grandes ; on parle alors de régime diffractif. Dans le cas où les aberrations sont grandes, on utilise l'approche géométrique. On peut alors effectuer une analyse des pentes de l'écart normal ; sachant que les rayons sont perpendiculaires au front d'onde, on aura accès à l'étendue de la tache correspondant à l'image d'un point par l'instrument.

La conception d'un système optique passe donc par le calcul de la combinaison optique à adopter de manière à minimiser les aberrations pour quelles restent dans la limite acceptable par le cahier des charges (spécifications sur la taille maximale de la tache image, sur la qualité du front d'onde, etc.).

1.1.1.3 Surfaces optiques

Une fois le design optique défini, il faut que les surfaces optiques composant le système soient les plus proches possibles de ce qui a été spécifié. Nous allons dans ce paragraphe introduire quelques notions sur les surfaces optiques.

Une surface optique est définie comme sur la Figure 1.5, avec un certain rayon de courbure, un diamètre, la flèche associée et le cas échéant une constante de conicité si la surface est asphérique (voir d'autres coefficients d'asphérisation d'ordre supérieur).

Dans la pratique, suite aux différentes étapes de fabrication des surfaces optiques (voir 4.1.1.1 pour plus de détails), la surface réelle fabriquée ne correspondra pas parfaitement à la surface théorique souhaitée. L'écart entre la surface réelle et la surface idéale va provoquer une déformation de la surface

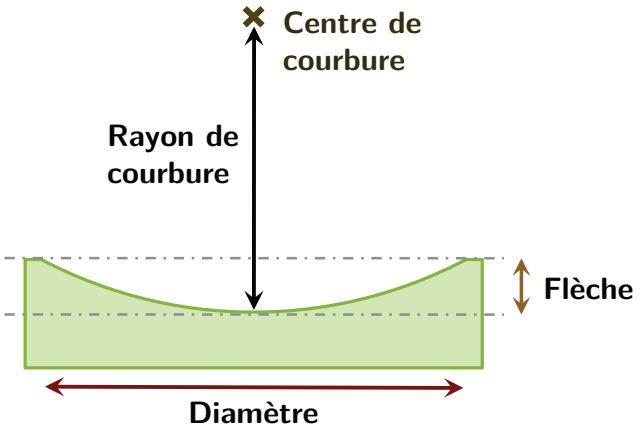


FIGURE 1.5 – Représentation d'une surface optique avec quelques grandeurs associées.

d'onde. On cherche donc à quantifier l'écart entre la surface réelle et la surface désirée afin d'estimer si cet écart rentre dans les tolérances.

Le calcul de la *densité spectrale de puissance* de la surface, c'est-à-dire la transformée de Fourier de l'autocorrélation de la surface, permet de déterminer la répartition des défauts en terme de fréquences spatiales. Selon la gamme de fréquences spatiales considérée, on distingue trois grands types de défauts de surface :

- les **défauts de forme** (« figure errors » en anglais) : ces défauts correspondant à quelques oscillations sur la surface, soit les basses fréquences spatiales. Ils vont avoir un effet direct sur la réponse percussionnelle du système optique en introduisant des aberrations d'ordre relativement faible.
- la **rugosité** (« (micro–)roughness » en anglais), correspondant à des hautes fréquences spatiales. La rugosité va générer de la diffusion et donc une perte de flux pour l'image utile et la création d'un voile sur l'image.
- les **ondulations** (« waviness » en anglais) correspondant aux fréquences spatiales intermédiaires.

Les différentes fréquences spatiales sont mesurables en pratique via plusieurs instruments. L'interférométrie permet de mesurer une pièce dans son ensemble ; elle donne donc accès aux erreurs de forme. La rugosité est mesurée sur des petites surfaces (quelques μm^2), en général grâce à un rugosimètre ou par AFM (microscopie à force atomique). Les ondulations nécessitent une technique de métrologie intermédiaire, par exemple un profilomètre.

On peut alors déterminer l'influence de ces défauts sur la qualité du système optique :

- pour les défauts de forme : en calculant l'écart normal. Si l'on est dans le régime des faibles aberrations (régime diffractif), on peut par exemple comparer l'écart normal RMS au critère de Maréchal. Dans le cas du régime géométrique, on peut étudier les défauts de pentes de la surface d'onde pour trouver une estimation de l'étendue de la tache image par exemple.
- pour la rugosité : le TIS (*Total Integrated Scatter*) donne une estimation de la proportion de lumière diffusée due à la rugosité [Harvey2012]. Le TIS est le rapport du flux diffusé par le flux total (diffusé et spéculaire) ; il dépend de la longueur d'onde λ, de l'angle d'incidence ϕ sur la surface et de la rugosité σ_R (valeur RMS) et vaut :

$$TIS = 1 - \exp\left(-\left(\frac{4\pi\sigma_R \cos\phi}{\lambda}\right)^2\right) \approx \left(\frac{4\pi\sigma_R \cos\phi}{\lambda}\right)^2 \tag{1.14}$$

1.1.2 Composants optiques pour rayons X

1.1.2.1 Quelques rappels sur les rayons X

Les rayons X ont été découvert par Wilhelm Röntgen en 1895. Longtemps laissés de côté, du fait de la présence de très nombreuses résonances atomiques dans cette gamme spectrale, donc une absorption généralement très gênante, la gamme des rayons X dispose cependant de propriétés optiques très intéressantes.

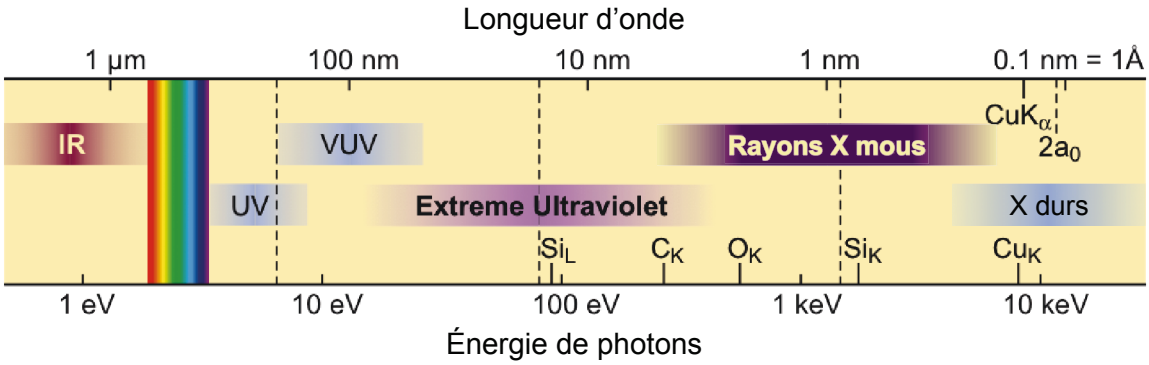


FIGURE 1.6 – Spectre électromagnétique – Région des courtes longueurs d'onde. *D'après [Attwood1999]* IR : Infrarouge, UV : Ultraviolet, VUV : *Vacuum Ultraviolet*, ou ultraviolets « du vide »

Sur la Figure 1.6 sont représentés différents domaines spectraux correspondant à des longueurs d'onde plus courtes que le domaine visible. Dans ces gammes spectrales, on parle en général préférentiellement en énergie de photons plutôt qu'en longueur d'onde. Le lien entre énergie et longueur d'onde est donné par l'équation d'Einstein (1.15).

$$E = \frac{hc}{\lambda} \tag{1.15}$$

avec E l'énergie de photon en Joule (J), λ la longueur d'onde en m, h la constante de Planck ($h = 6{,}626 \cdot 10^{-34}$ J $\cdot$ s) et c la célérité de la lumière dans le vide ($c = 29979246$ m/s).

L'énergie de photon est généralement exprimée en électrons-volts (eV) : $E(eV) = \frac{E(J)}{e}$ où $e = 1{,}6 \cdot 10^{-19}$ C est la charge élémentaire.
En exprimant la longueur d'onde en nm et l'énergie en eV, on obtient :

$$E(eV) \approx \frac{1239{,}8}{\lambda(nm)} \tag{1.16}$$

Comme représenté en Figure 1.6, la gamme spectrale correspondant à des longueurs d'onde plus courtes que la lumière visible est divisée en plusieurs domaines, dont le rayonnement ultraviolet, ou *UV*, et les rayons X. Ces différents domaines ne sont pas clairement délimités et leurs bornes peuvent donc varier dans la littérature. De manière générale, on appelle « UV » le rayonnement correspondant à des énergies de photons juste au dessus du domaine visible, soit approximativement entre quelques eV et 10 eV. La gamme VUV, c'est-à-dire le rayonnement UV du vide, correspond à un domaine ultraviolet qui ne peut se propager que sous vide. Il correspond à une gamme spectrale entre environ 10 eV et quelques dizaines d'eV. La gamme spectrale suivante, le rayonnement extrême ultraviolet, va de environ 30 eV à 250 eV. Les rayons X mous concernent la gamme spectrale entre 250 eV et quelques keV. Ensuite, on trouve les rayons X durs qui correspondent à un domaine allant de quelques keV à

quelques dizaines de keV. Pour des énergies de photons encore plus élevées, on trouvera les rayons gamma (non représentés sur la Figure 1.6).

Dans la suite, je parlerai indifféremment de « rayons X », ou simplement « X »(« rayons X mous », ou « X mous » ; « rayons X durs », ou « X durs »). Par ailleurs, pour la suite, le terme « XUV » concernera la gamme spectrale regroupant les rayons UV extrêmes et les rayons X mous, soit pour des énergies de photons entre quelques dizaines d'eV à quelques keV.

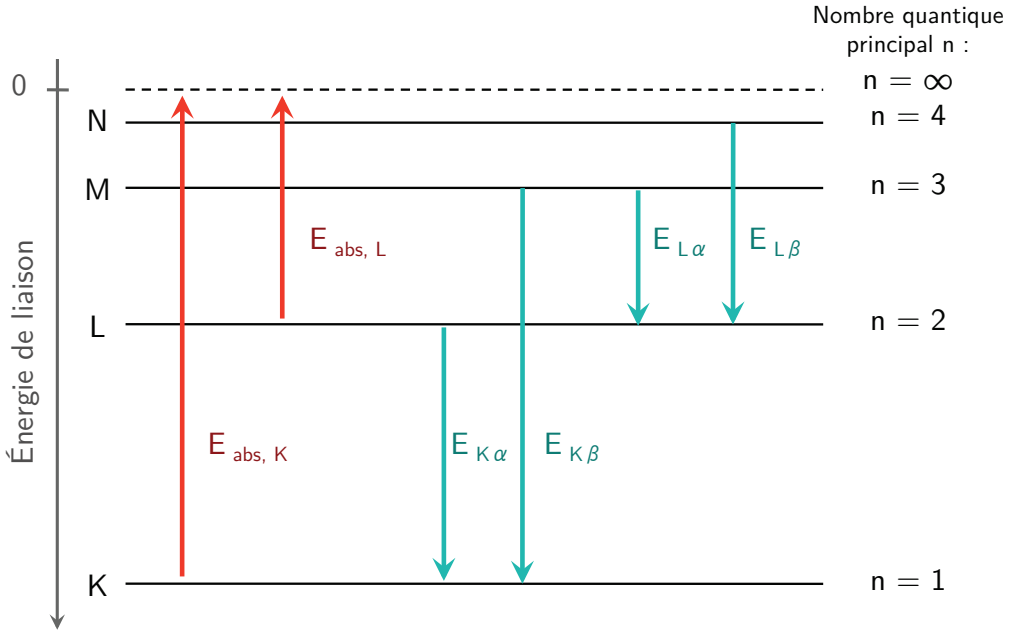


FIGURE 1.7 – Schéma simplifié des différents niveaux énergétiques d'un atome, et les seuils d'absorption et raies d'émission associés. Les flèches rouges correspondent aux seuils d'absorption. Les flèches bleues correspondent aux raies d'émission caractéristiques.

Dans le domaine du rayonnement XUV, on trouve de nombreuses raies d'absorption et d'émission. La Figure 1.7 montre une représentation simplifiée des différents niveaux d'énergie des électrons d'un atome. Les électrons sont répartis sur plusieurs couches électroniques (K, L, M, etc.) données par le nombre quantique principal n (n=1 pour la couche K, n=2 pour la couche L, etc.). Les électrons peuvent réagir avec des photons incidents par effet photoélectrique. Afin de pouvoir expulser un électron dans le continuum, un photon doit avoir une énergie suffisante. Cette énergie minimale correspond au seuil d'absorption : ainsi, pour qu'un photon d'énergie $h\nu$ soit absorbé par l'atome et expulse un électron de la couche K, son énergie doit vérifier $h\nu > E_{abs,K}$, avec $E_{abs,K}$ l'énergie du seuil d'absorption K de l'atome. L'électron aura alors une énergie cinétique $E_{cinétique} = h\nu - E_{abs,K}$.

Parallèlement, lorsque l'atome se trouve dans un état excité et qu'un électron manque dans une des couches internes, l'atome peut revenir dans un état plus stable via la transition d'un électron d'une couche supérieure vers la couche incomplète. Il peut alors y avoir émission d'un photon dont l'énergie correspondra à la différence d'énergie entre les deux couches électroniques (phénomène de fluorescence). Par exemple, lors d'une transition électronique de la couche L vers la couche K, il peut y avoir émission d'un photon d'énergie $E_{K\alpha}$ (voir Figure 1.7) ; pour une transition de la couche M vers la couche K, l'énergie du photon émis sera $E_{K\beta}$, et ainsi de suite. On parle alors de raie d'émission Kα, Kβ, etc. de l'atome en question. Ces différents seuils d'absorption et raies d'émission sont de

véritables signatures de l'atome.

Dans la pratique, la répartition des électrons n'est pas aussi simple que décrit en Figure 1.7. Chaque couche électronique (L, M, etc.) est divisée en plusieurs sous-couches comme définies par les autres nombres quantiques, ce qui donne lieu à des subdivisions des seuils d'absorption et d'émission (seuils d'absorption L_1, L_2, L_3, etc. ; raies d'émissions $K\alpha_1$, $K\alpha_2$, $K\beta_1$, etc. ; voir Figure 1.8).

Table 1.1 – Exemples de seuils d'absorption et de raies d'émission pour quelques éléments. Les raies indiquées sont définies dans la Figure 1.8. Source : [Thompson2009]

Élément	Absorption				Émission		
	Seuil K	Seuil L_1	Seuil L_2	Seuil L_3	Raie $K\alpha_1$	Raie $K\alpha_2$	Raie $K\beta_1$
B (Z=5)	188 eV	–	–	–	183,3 eV	–	–
C (Z=6)	284,2 eV	–	–	–	277 eV	–	–
N (Z=7)	409,9 eV	37,3 eV	–	–	392,4 eV	–	–
O (Z=8)	543,1 eV	41,6 eV	–	–	524,9 eV	–	–
Sc (Z=21)	4492 eV	498 eV	403,6 eV	398,7 eV	4090,6 eV	4086,1 eV	4460,5 eV
Cr (Z=24)	5989 eV	696 eV	583,8 eV	574,1 eV	5414,72 eV	5405,509 eV	5946,71 eV
Cu (Z=29)	8980,5 eV	1096,7 eV	952,3 eV	932,7 eV	8047,78 eV	8027,83 eV	8905,29 eV

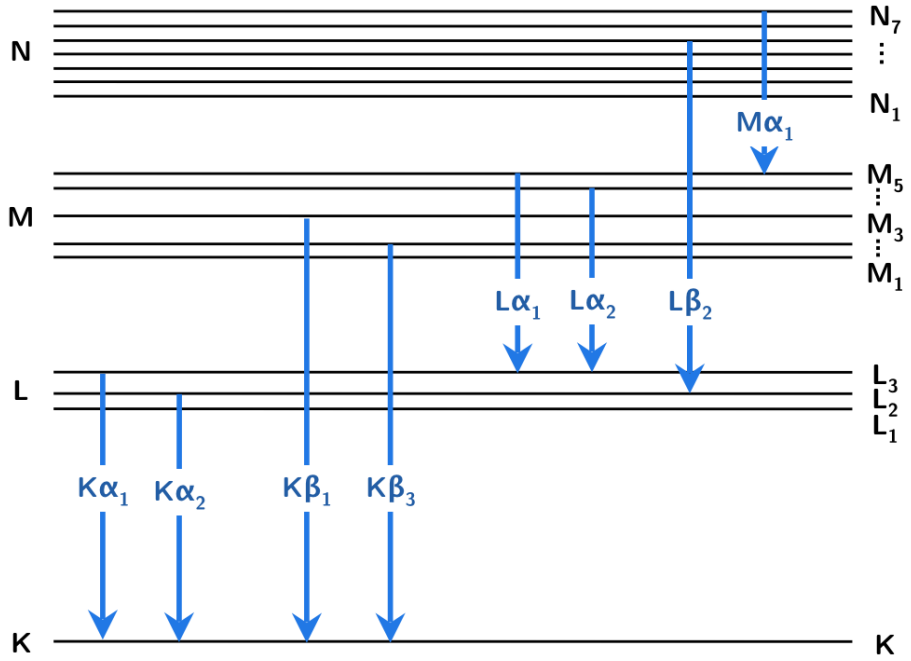


Figure 1.8 – Schéma des différents niveaux énergétiques d'un atome et des raies d'émission associées.

La mécanique quantique prédit que toutes les transitions entre les différentes sous-couches ne sont pas autorisées. À titre d'exemple, on donne en Table 1.1 quelques valeurs de seuils d'absorption et de raies d'émission pour quelques éléments.

La Table 1.1 permet de mettre en évidence la présence de très nombreux seuils d'absorption couvrant toute la gamme XUV. On peut voir en effet que pour les éléments représentés dans la Table 1.1 des seuils d'absorption sont présents entre approximativement 30 eV et 9000 eV, couvrant ainsi toute la gamme des rayons XUV. On verra par la suite que la présence de tels seuils d'absorption va permettre des propriétés intéressantes, comme le contraste d'absorption entre deux éléments.

Dans le domaine XUV, les propriétés optiques d'un matériau peuvent être décrites grâce aux *facteurs de diffusion atomique* des éléments composant ce matériau. Les facteurs de diffusion atomique décrivent d'un point de vue microscopique les interactions des photons X incidents sur un atome. La lumière incidente sur un atome va être diffusée par ses électrons. La diffusion sera alors caractéristique de l'élément en question et dépendra de la fréquence de l'onde incidente ω, des fréquences de résonances des différents électrons ω_s (chaque fréquence ω_s dépendant de la force de liaison entre l'électron et le noyau de l'atome) et des différences de phases provenant de la répartition des électrons dans le nuage électronique. Ces différences de phase peuvent être négligées dans le domaine XUV dans lequel la longueur d'onde reste grande devant le rayon de l'atome (et donc la distance entre les différents électrons). On obtient le champ diffusé par un atome contenant de multiples électrons en multipliant le champ diffusé par un électron libre par le *facteur de diffusion atomique complexe* $f^{(0)}(\omega)$ [3], défini par :

$$f^{(0)}(\omega) = \sum_s \frac{g_s \omega^2}{\omega^2 - \omega_s^2 + i\gamma\omega} \tag{1.17}$$

où γ un facteur représentant des pertes d'énergie par dissipation et g_s représente la « force d'oscillateur », c'est-à-dire le nombre d'électrons intervenant à la fréquence de résonance ω_s. Les différents g_s vérifient :

$$\sum_s g_s = Z \tag{1.18}$$

avec Z le numéro atomique de l'atome considéré.
Dans ce cas, la section efficace de diffusion $\sigma(\omega)$ pour un atome sera :

$$\sigma(\omega) = \sigma_e \left| f^{(0)}(\omega) \right|^2 = \frac{8\pi}{3} r_e^2 \left| f^{(0)}(\omega) \right|^2 \tag{1.19}$$

où σ_e est la section efficace de diffusion pour un électron libre et r_e est le rayon classique de l'électron ($r_e = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 mc^2} \approx 2.82 \times 10^{-15}$ m).

Pour la suite, on va décomposer le facteur de diffusion atomique de la façon suivante, entre partie réelle et partie imaginaire :

$$f^{(0)}(\omega) = f_1^{(0)}(\omega) - i f_2^{(0)}(\omega) \tag{1.20}$$

Le terme $f_2^{(0)}(\omega)$ représente l'absorption, plus précisément sa valeur correspond environ au nombre d'électrons par atome pouvant interagir avec des photons d'énergie $\hbar\omega$ [4]. La partie réelle $f_1^{(0)}(\omega)$ montre les résonances électroniques et représente le nombre d'électrons libres qui vont participer à la diffusion du rayonnement incident.

Afin de décrire les propriétés optiques macroscopiques d'un matériau, on utilise l'**indice de réfraction**. Dans la gamme spectrale XUV, celui-ci peut s'écrire en fonction des facteurs de diffusion atomique :

$$\tilde{n}(\omega) = 1 - \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} \left[f_1^{(0)}(\omega) - i f_2^{(0)}(\omega) \right] \tag{1.21}$$

que l'on simplifie généralement par la notation suivante :

$$\tilde{n}(\omega) = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega) \quad \text{avec} \quad \delta(\omega) = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_1^{(0)}(\omega) \quad \text{et} \quad \beta(\omega) = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_2^{(0)}(\omega) \tag{1.22}$$

3. L'exposant $^{(0)}$ signifie qu'une approximation est faite : on néglige le terme de phase du facteur de diffusion atomique. Cette approximation est valable dans deux cas : soit dans le cas où la longueur d'onde est grande devant le rayon de Bohr, soit dans le cas où la diffusion se fait principalement vers l'avant. Voir aussi [Attwood1999]

4. On rappelle que $\hbar = \frac{h}{2\pi} \approx 1.055 \times 10^{-34} J \cdot s$

où n_a est la densité atomique (nombre d'atomes par unité de volume) et λ la longueur d'onde. L'indice complexe peut également être noté de la façon suivante : $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + ik(\omega)$ avec n la partie réelle de l'indice et k sa partie imaginaire. On a alors : $n(\omega) = 1 - \delta(\omega)$ et $k(\omega) = \beta(\omega)$.

Dans le cas où le milieu considéré est composé de différents types d'atomes, l'indice sera modifié en tenant compte de la densité atomique de chaque espèce :

$$\tilde{n}(\omega) = 1 - \frac{r_e \lambda^2}{2\pi} \sum_j n_j \left[f_{1,j}^{(0)}(\omega) - i f_{2,j}^{(0)}(\omega) \right] = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega) \tag{1.23}$$

où n_j représente la densité atomique de l'espèce j, et $f_{1,j}^{(0)}$ et $f_{2,j}^{(0)}$ ses facteurs de diffusion atomique.

La partie réelle de l'indice introduit un changement de phase à cause du matériau, et la partie imaginaire est responsable de l'absorption dans le matériau et va provoquer une décroissance exponentielle du champ électrique. Ceci nous permet de définir la **longueur d'atténuation** l_{att} dans le matériau, en écrivant la loi de Beer-Lambert, également valable dans le domaine XUV. L'intensité $I(z)$ de l'onde se propageant selon la direction z dans le milieu d'indice $\tilde{n} = 1 - \delta + i\beta$ peut s'écrire sous la forme :

$$I(z) = I_0 \exp(-z/l_{att}) \tag{1.24}$$

où I_0 est l'intensité de l'onde incidente sur le milieu. On peut également écrire via les relations de Maxwell :

$$I(z) = I_0 \exp(-z \times \frac{4\pi\beta}{\lambda}) \tag{1.25}$$

La longueur d'atténuation dans un matériau peut donc s'écrire de la manière suivante :

$$l_{att} = \frac{\lambda}{4\pi\beta} \tag{1.26}$$

À titre d'exemple, on donne en Table 1.2 les valeurs des longueurs d'absorption dans différents matériaux pour plusieurs énergies de photons, ainsi que quelques valeurs des constantes optiques δ et β. On peut voir que la longueur d'atténuation est très courte, de l'ordre du millimètre pour les rayons X durs et de l'ordre du micron (voire de la centaine de nanomètre) pour les rayons X mous.

Dans la suite, il sera question d'une gamme spectrale particulière, la **fenêtre de l'eau**, qui correspond au domaine situé entre les seuils d'absorption Kα du carbone et de l'oxygène, soit des énergies de photon comprises entre 284 eV (λ = 4,4 nm) et 543 eV (λ = 2,4 nm). Cette gamme spectrale est tout particulièrement intéressante pour l'observation d'échantillons biologiques. En effet, elle correspond à des énergies de photons supérieures au seuil d'absorption Kα du carbone : le carbone sera donc particulièrement absorbant. En revanche, l'énergie des photons dans cette gamme spectrale est inférieure au seuil d'absorption Kα de l'oxygène, qui sera donc relativement transparent. Or les cellules biologiques sont majoritairement constituées d'eau, qui sera donc relativement transparente dans cette gamme spectrale (grâce au seuil de l'oxygène), ainsi que de structures (ADN, membranes et composés contenant des protéines, lipides, etc.) contenant du carbone et donc très absorbantes. Le contraste d'absorption, que l'on définit ici par le quotient $\frac{T_{eau}(z) - T_{carbone}(z)}{T_{eau}(z) + T_{carbone}(z)}$, avec $T_{eau}(z)$ la transmission de l'eau sur une épaisseur z et $T_{carbone}(z)$ celle du carbone sur la même épaisseur z, sera donc naturellement élevé pour l'observation d'échantillons biologiques. À titre d'illustration, on représente en Figure 1.9(a) la longueur d'atténuation dans l'eau et dans le carbone pour des énergies de photon

TABLE 1.2 – Longueur d'atténuation et constantes optiques pour quelques matériaux à différentes énergies de photon.

		Matériau / Élément		
		C	H_2O	SiO_2
l_{att} (mm)	300 eV	$0{,}1 \cdot 10^{-3}$	$2{,}26 \cdot 10^{-3}$	$0{,}257 \cdot 10^{-3}$
	500 eV	$0{,}33 \cdot 10^{-3}$	$8{,}24 \cdot 10^{-3}$	$0{,}844 \cdot 10^{-3}$
	8048 eV	1,056	1,007	0,133
δ	300 eV	0,002284	0,002131	0,004155
	500 eV	0,001843	0,0006194	0,001385
	8048 eV	$7{,}067 \cdot 10^{-6}$	$3{,}577 \cdot 10^{-6}$	$7{,}126 \cdot 10^{-6}$
β	300 eV	0,003315	0,0001459	0,001278
	500 eV	0,0005946	$2{,}395 \cdot 10^{-5}$	0,0002338
	8048 eV	$1{,}161\ 0 \cdot 10^{-8}$	$1{,}217 \cdot 10^{-8}$	$9{,}237 \cdot 10^{-8}$

comprises entre 200 eV et 600 eV, ainsi que le contraste d'absorption entre l'eau et le carbone (Figure 1.9(b)) pour différentes épaisseurs.

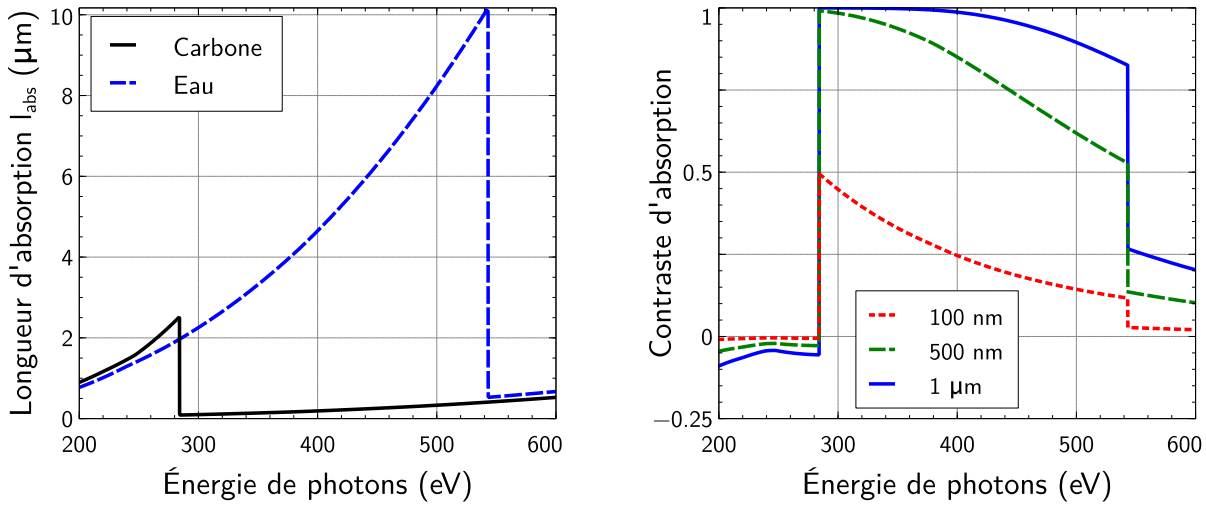
On a vu au tout début de cette section que du fait de leur courte longueur d'onde, les rayons X ont un caractère fortement ionisant en interagissant beaucoup avec la matière.

Dans le cas de l'utilisation de rayons X pour l'observation d'échantillons biologiques (ou tout autre type d'échantillon nécessitant des précautions), il faudra donc faire attention à la dose de rayons X reçue par l'échantillon, c'est-à-dire la quantité de rayonnement reçue. Si cette dose est dépassée, l'échantillon sera alors irrémédiablement endommagé (cellules biologiques perforées par exemple) et l'image obtenue ne sera donc plus du tout représentative de ce que l'on souhaitait voir initialement. Pour plus d'informations, les problématiques de dose sur des échantillons biologiques sont décrites dans la littérature, par exemple en référence [Kirz1995].

Concrètement, la détermination des facteurs de diffusion atomiques peut se faire de la façon suivante. On mesure l'absorption pour en déduire la partie imaginaire du facteur de diffusion atomique $f_2^{(0)}$. On calcule ensuite via la formule de Kramers-Kronig [Kramers1927, Kronig1926, Attwood1999] la partie réelle du facteur de diffusion atomique $f_1^{(0)}$. Il est également possible de mesurer $f_1^{(0)}$ par une mesure de réflectivité, puis d'en déduire $f_2^{(0)}$ par la formule de Kramers-Kronig. La première méthode est cependant la plus courante. On peut ensuite déduire l'indice via l'équation (1.21). Henke *et al.* ont regroupé dans des tables les valeurs théoriques des facteurs de diffusion atomique d'un certain nombre d'éléments (Z=1–92), calculées d'après les relations de Kramers-Kronigs, pour des énergies de photon entre 10 eV et 30 keV. Pour certains éléments les valeurs incluses dans les tables de Henke *et al.* sont des valeurs expérimentales. Ces tables sont disponibles en référence [Henke1993] ainsi que sur le site internet du Center for X-Ray Optics (CXRO) [5].

Pour des longueurs d'onde dans le domaine XUV, δ et β sont généralement très petits devant 1 (voir quelques valeurs en Table 1.2). La partie réelle de l'indice va alors être plus petite que 1. La réfraction sera alors très faible. Par ailleurs, lorsqu'il y a réfraction d'un rayon par propagation du vide vers un matériau, le rayon sera dévié non pas en s'approchant de la normale comme dans le visible, mais en s'en écartant.

5. `http://henke.lbl.gov/optical_constants/`



(a) (b)

FIGURE 1.9 – (a) Longueur d'absorption dans le carbone (noir) et dans l'eau (bleu) en fonction de l'énergie de photon (b) Contraste d'absorption entre l'eau et le carbone pour différentes épaisseurs traversées (100 nm : rouge ; 500 nm : vert ; 1 μm : bleu) en fonction de l'énergie de photons. On peut voir sur les deux graphes des ruptures de pente mettant en évidence les seuils d'absorption K du carbone ($h\nu = 284$ eV) et de l'oxygène ($h\nu = 543$ eV).

Pour toute la suite, on appellera *angle d'incidence* sur une surface l'angle entre un faisceau incident et la normale à la surface. L'*angle de rasance* sera l'angle entre le faisceau et la surface (voir Figure Figure 1.10(a) : l'angle ϕ est l'angle d'incidence et l'angle θ est l'angle de rasance).

De la même manière que dans le domaine visible, on peut écrire la loi de Snell-Descartes pour décrire la réfraction à l'interface entre le vide et un matériau d'indice n. En notant ϕ et ϕ' respectivement l'angle d'incidence et l'angle après réfraction (angles mesurés par rapport à la normale ; voir Figure 1.10(a)) :

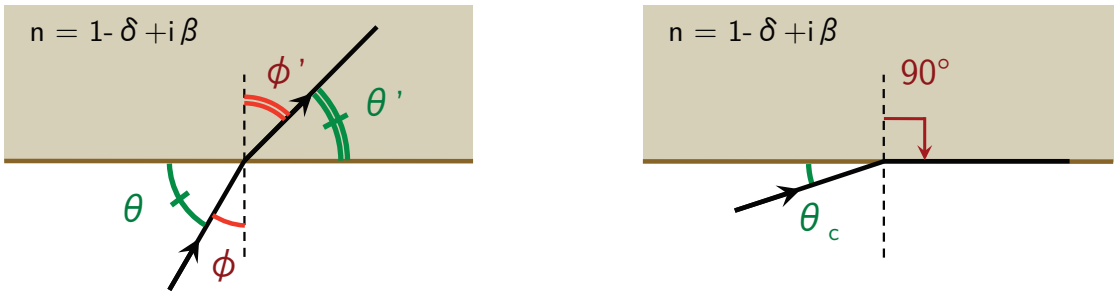
$$\sin\phi = n\sin\phi' \tag{1.27}$$

On peut donc rencontrer le phénomène de *réflexion totale externe*, analogue au phénomène de réflexion totale interne survenant dans le visible (par exemple dans le cas d'un prisme). Ici, il apparaît dans le cas où l'angle d'incidence sur le matériau est plus grand qu'une certaine valeur critique ϕ_c telle que $\phi'_c = \pi/2$ (voir Figure 1.10(b)). En parlant en terme d'angle de rasance, lorsque l'angle de rasance θ est plus petit que l'angle critique θ_c, l'onde est totalement réfléchie (à l'absorption près). On a alors : $\sin\phi_c = \cos(\theta_c) = n = 1 - \delta + i\beta$ En supposant l'absorption faible, l'angle critique vérifie donc la relation $cos(\theta) \approx 1 - \delta$, soit, avec $\theta_c \ll 1$:

$$\theta_c = \sqrt{2\delta} \tag{1.28}$$

1.1.2.2 Composants diffractifs

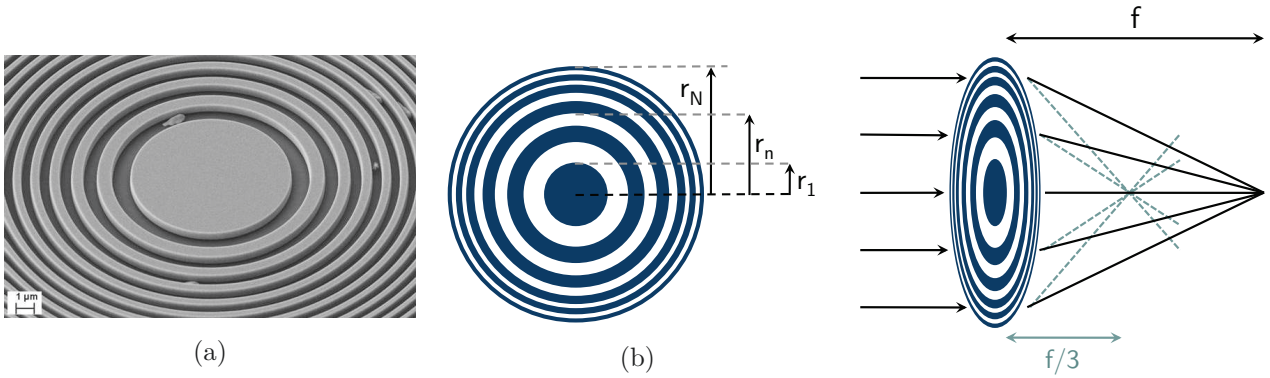
On a vu au paragraphe 1.1.2.1 que dans le domaine des rayons X, l'indice pouvait s'écrire sous la forme $n = 1 - \delta + i\beta$, avec $\delta, \beta \ll 1$. La réfraction est très faible sur une épaisseur de l'ordre de la longueur d'atténuation l_{att}, et n'est pas suffisante avant que la lumière soit absorbée, pour envisager d'utiliser des composants optiques réfractifs pour dévier la lumière.



(a) Réfraction à l'interface vide – matériau d'indice n (b) Réflexion totale externe

FIGURE 1.10 – Réfraction et réflexion totale externe dans le domaine XUV.

Des composants utilisant la diffraction sont donc très souvent utilisés : les lentilles à zones de Fresnel (ou *Fresnel Zone Plate*, FZP en anglais) [Baez1952]. Les lentilles à zones de Fresnel sont des composants diffractifs constitués d'une alternance de zones opaques et de zones transparentes, ces zones étant des anneaux concentriques dont le diamètre diminue avec la distance de la zone au centre de la « lentille » (voir Figure 1.11).



(a) (b) (c)

FIGURE 1.11 – Représentation d'une lentille à zones de Fresnel (a) Image SEM (*Scanning Electron Microscopy*, Microscopie Électronique à Balayage), la graduation en bas à gauche représente 1 μm (source : `www.nanoscopeservices.co.uk`) (b) Schéma d'une lentille à zones de Fresnel et les notations utilisées. Les zones bleu foncé sont les zones absorbantes/déphasantes et les zones blanches sont les zones transparentes (c) Schéma du fonctionnement d'une lentille à zones de Fresnel. Les rayons diffractés à l'ordre 1 sont en noir ; des rayons correspondant à l'ordre 3 sont également représentés (pointillés).

Les lentilles à zones de Fresnel sont actuellement très utilisées dans le domaine de l'imagerie à rayons X car elles permettent d'atteindre de très hautes résolutions, proches de la limite de diffraction [Chao2009, Jacobsen1991].

Elles sont constituées d'une alternance de zones concentriques transparentes et opaques. Une zone n est un anneau délimitée par des rayons r_{n-1} et r_n. Chaque rayon r_n (voir Figure 1.11(b)) est choisi de sorte à ce que tous les rayons diffractés par le composants soient focalisés en un même point, qu'on appellera « foyer » par analogie avec les lentilles réfractives. Pour cela, le chemin optique parcouru doit être incrémenté de $\lambda/2$ entre un zone n et la zone suivante n+1. Le rayon extrême r_n d'une zone

n doit donc vérifier (pour une conjugaison $\infty \rightarrow$ foyer) :

$$r_n^2 + f^2 = \left(f + \frac{n\lambda}{2}\right)^2 \tag{1.29}$$

où f est la « distance focale » (voir Figure 1.11(c)), c'est-à-dire la distance entre la lentille de Fresnel et le point de focalisation. Ceci permet d'écrire : $r_n \approx \sqrt{n\lambda f}$.

On peut relier les différentes grandeurs de la lentille de Fresnel (focale f, diamètre Φ, ouverture numérique ON) au nombre total de zones N, à l'épaisseur de la dernière zone Δr et à la longueur d'onde λ :

$$\Phi \approx 4N\Delta r \tag{1.30a}$$

$$f \approx \frac{4N(\Delta r)^2}{\lambda} \tag{1.30b}$$

$$ON \approx \frac{\lambda}{2\Delta r} \tag{1.30c}$$

On peut noter que les lentilles de Fresnel sont des composants très chromatiques, en raison de la dépendance de la focale f avec la longueur d'onde λ (voir équation (1.30b)).

La résolution obtenue au sens du critère de Rayleigh est : $\Delta\rho_{Rayleigh} = \frac{0,61\lambda}{ON}$, et donc, d'après l'équation (1.30c) :

$$\Delta\rho_{Rayleigh} = 1{,}22 \times \Delta r \tag{1.31}$$

La résolution atteignable avec une lentille à zones de Fresnel est donc très proche de l'épaisseur de la zone la plus proche du bord du composant. Autrement dit, la résolution que l'on peut espérer atteindre avec une lentille à zones de Fresnel est directement liée à notre capacité de fabriquer des zones les plus fines possible. Actuellement, il a été possible de fabriquer une lentille à zones de Fresnel dont l'épaisseur de la dernière zone était de 15 nm. Il a été démontré que cette lentille de Fresnel permettait d'obtenir une résolution de 12 nm [Chao2009].

Les formules précédentes ont été données dans le cas où on ne considère que l'ordre 1 de diffraction. Les ordres supérieurs (3, 5, etc.) existent également et forment d'autres images, situées à une distance f/m de la lentille à zones de Fresnel, avec m l'ordre de diffraction (voir la Figure 1.11(c) pour une représentation de l'ordre 3 en pointillés). De même, des images sont également formées pour les ordres négatifs (–1, –3, –5, etc.) ; les foyers correspondant sont alors virtuels. L'efficacité η_m de l'ordre de diffraction m vérifie :

$$\eta_m = \begin{cases} \frac{1}{4} & \text{si } m = 0 \\ \frac{1}{m^2\pi^2} & \text{si m est impair} \\ 0 & \text{si m est pair} \end{cases} \tag{1.32}$$

Ainsi, une lentille à zones de Fresnel aura une efficacité de $1/\pi^2 \approx 10\%$ pour l'ordre 1.

La moitié du flux incident sera absorbé [Attwood1999]. Cette efficacité peut être améliorée en utilisant non plus des zones absorbantes, mais des zones déphasantes. Idéalement, ces zones doivent introduire un déphasage de $\lambda/2$, ce qui impose l'épaisseur du matériau de $\lambda/(2\delta)$. Cependant, cette épaisseur serait bien trop grande devant la longueur d'atténuation dans le matériau pour espérer un gain significatif de l'efficacité de la lentille de Fresnel. Il a été montré [Kirz1974] qu'il est possible d'améliorer l'efficacité de la lentille à zones de Fresnel en optimisant son épaisseur en fonction du rapport β/δ. Actuellement, des efficacités de l'ordre de quelques pourcents [Chao2005, Holmberg2011], jusqu'à 10% [Jacobsen1991] ou 12.9% [Bertilson2007] ont été mesurées pour des lentilles à zones de

Fresnel fonctionnant dans la gamme des rayons X mous. Ces valeurs dépendent beaucoup de la largeur spectrale nécessaire pour l'utilisation du composant, pouvant atteindre jusqu'à 20% dans la gamme des rayons X durs [Gorelick2011].

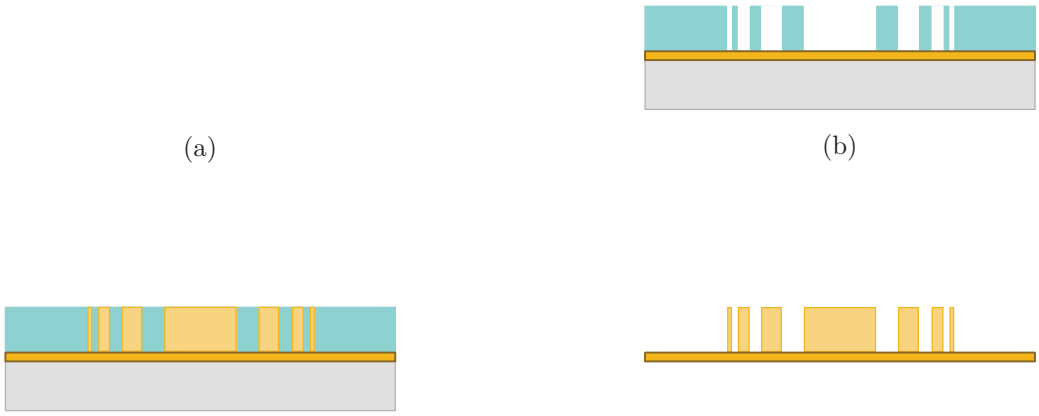


FIGURE 1.12 – Représentation très schématique des différentes étapes de fabrication d'une lentille à zones de Fresnel (vue transverse). Les zones bleu grisé représentent les portions de polymère éclairées par le faisceau d'électrons. En bleu clair : le polymère non éclairé ; en jaune : le matériau pour les zones absorbantes de la lentille à zones de Fresnel.

Concrètement, les lentilles à zones de Fresnel sont fabriquées via un processus utilisant un faisceau d'électrons (voir Figure 1.12) :

1. on utilise dans un premier temps une résine (typiquement du PMMA, *polyméthyl méthacrylate*) qu'on éclaire avec le motif désiré grâce à un faisceau d'électrons (Figure 1.12(a))
2. après illumination de la résine, on la développe par un procédé chimique, qui va ôter les parties qui ont été éclairées par le faisceau d'électrons. On obtient ainsi un moule (Figure 1.12(b))
3. le matériau désiré (choisi pour ses propriétés en terme de déphasage et d'absorption ; par exemple de l'or) est ensuite déposé dans les trous du moule apparus après développement. Ceci va créer les zones absorbantes / déphasantes (Figure 1.12(c))
4. on enlève enfin le reste de résine : il ne reste alors que la structure souhaitée, les zones transparentes n'étant alors constituées que de vide (Figure 1.12(d)).

1.1.2.3 Composants réflectifs

On a vu que dans le domaine des rayons X, il n'est pas envisageable d'utiliser des composants réfractifs. Les composants réflectifs (*miroirs*) sont une alternative aux composants diffractifs, en permettant de défléchir la lumière dans la direction désirée, en fonction de la forme qu'on a donnée au substrat du miroir. Pour que l'efficacité d'un système optique à miroirs soit suffisante, la réflectivité de chaque miroir doit être la plus élevée possible. Nous allons détailler dans la suite deux types de miroirs dans le domaine des rayons X : les miroirs en incidence rasante et les miroirs à revêtements multicouches.

1.1.2.3.1 Miroirs en incidence rasante

Le principe des miroirs en incidence rasante est d'utiliser le phénomène de réflexion totale externe, décrit au paragraphe 1.1.2.1. En effet, on a vu que si l'angle de rasance est plus petit que l'angle critique θ_c (voir l'équation (1.28)), le faisceau incident sera totalement réfléchi, à l'absorption près. Ce type de dispositif permet d'obtenir de fortes réflectivités. En fonction du rapport entre δ et β et de l'angle de rasance, les réflectivités peuvent atteindre quasiment 100% (voir Figure 1.13).

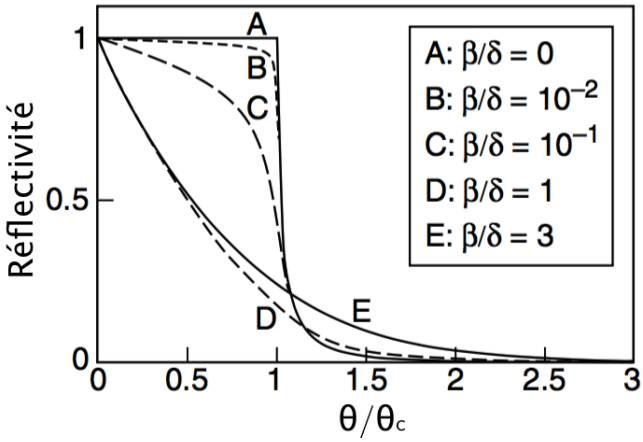


FIGURE 1.13 – Réflectivité en fonction du rapport angle de rasance θ sur angle critique θ_c, pour différentes valeurs du rapport β/δ. *D'après [Attwood1999]*

En pratique, pour les rayons X mous, δ est de l'ordre de 10^{-3}, ce qui donne un angle critique de l'ordre de 3°. La longueur minimale l_{min} à donner au miroir afin de réfléchir un faisceau de diamètre $\phi_{faisceau}$ avec un angle de rasance θ vérifie :

$$l_{min} = \frac{\phi_{faisceau}}{\sin\theta} \tag{1.33}$$

Par exemple, pour un faisceau incident de diamètre 10 mm éclairé sous un angle de rasance de 0,5°, il faut que la longueur d'un miroir soit de plus d'un mètre. Suivant l'utilisation (énergie de photon, angle de rasance, taille du faisceau), les miroirs en incidence rasante peuvent être de grande dimension, donc imposer un fort encombrement au système optique. Ce type de miroir apporte généralement des aberrations, telles que de l'astigmatisme. Les miroirs en incidence rasante ne sont donc pas les composants les plus adaptés pour des applications telles que l'imagerie, la résolution étant alors limitée par les aberrations. Par ailleurs, l'angle d'incidence sur ces miroirs doit rester très faible (plus petit que l'angle critique). Ils ne peuvent donc accepter qu'une faible ouverture numérique et un faible angle de champ, ce qui les rend là encore de relativement mauvais candidats pour de l'imagerie.

Différents designs optiques ont néanmoins été développés pour utiliser des miroirs en incidence rasante, tels que les télescopes de Wolter [Wolter1952], basés sur des miroirs elliptiques, paraboliques ou hyperboliques permettant une conjugaison stigmatique. Les télescopes Wolter de type I permettent par ailleurs d'augmenter la surface de collection en utilisant plusieurs « couches » de miroirs [Hailey2010].

Par ailleurs, on peut noter également l'existence de microscope à miroirs en incidence rasance : les microscopes Kirkpatrick-Baez [Kirkpatrick1948] composés de deux miroirs sphériques perpendiculaires permettant la focalisation du faisceau selon la direction respectivement horizontale et verticale, et corrigeant ainsi l'astigmatisme. Des versions améliorées de ce type de microscope existent : les microscopes Kirkpatrick-Baez amélioré [Bridou2002] qui permettent d'augmenter le champ du microscope. Ce type de microscope est particulièrement adapté pour les rayons X durs (énergie supérieure

à 1 keV) où seuls des miroirs rasants sont efficaces.

1.1.2.3.2 Miroirs multicouches

On a vu dans le paragraphe précédent que les miroirs en incidence rasante peuvent être plutôt inadaptés dans le cas d'imagerie X, bien qu'ils présentent souvent des réflectivités élevées. Pour faire de l'imagerie X, il peut être plus adapté d'utiliser des miroirs en incidence proche de la normale.

On peut calculer le facteur de réflexion en intensité pour une incidence normale à une interface « vide – matériau d'indice n » :

$$R = \left|\frac{1-\tilde{n}}{1+\tilde{n}}\right|^2 \approx \frac{\delta^2+\beta^2}{4} \tag{1.34}$$

en utilisant toujours la notation $\tilde{n} = 1 - \delta + i\beta$ de l'équation (1.23).

Ainsi, pour l'aluminium (qui a un fort facteur de réflexion dans le visible), on trouve $R \approx 3 \times 10^{-6}$ à une énergie de photons de 400 eV. On observera ce même résultat pour tous les matériaux dans le domaine XUV, puisqu'on a vu auparavant que $\delta, \beta \ll 1$. Il y aura donc toujours un coefficient de réflexion très faible en incidence normale pour les rayons X.

Afin de contourner ce problème, on peut utiliser des *revêtements multicouches*, déposés sur un substrat (voir Figure 1.14). Un revêtement multicouche est composé d'une alternance de couches de

FIGURE 1.14 – Schéma de fonctionnement d'un revêtement multicouche. Une alternance de deux matériaux A et E est déposée sur un substrat. En sortie du revêtement, les ondes réfléchies par chacune des interfaces s'ajoutent en phase.

différents matériaux. Ces matériaux et l'épaisseur de leurs couches sont choisis de manière à ce que toutes les réflexions à chaque interface dans le revêtement s'ajoutent en phase. La réflectivité est alors grandement augmentée, pouvant atteindre, suivant l'énergie de photon, entre quelques pour-cents et plus de 70% (voir la Figure 1.15). Pour la suite, on ne traitera que le cas de revêtements périodiques à deux matériaux. Les principes de fonctionnement sont généralisables pour des revêtements non périodiques ou contenant plus de deux matériaux différents. Il a même été montré que la réflectivité pouvait être augmentée en utilisant trois matériaux [Gautier2005b], voire davantage [Larruquert2002].

Un revêtement multicouche est constitué d'une alternance de couches de deux matériaux. La période est constituée des couches des deux matériaux répétées dans tout l'empilement ; pour le cas représenté en Figure 1.14, une période est donc composée d'une couche du matériau A et une couche

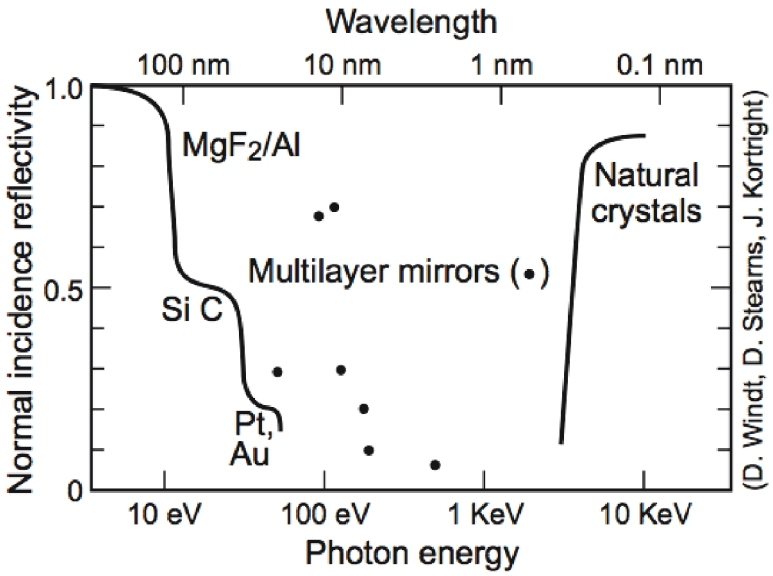


Figure 1.15 – Réflectivité en incidence normale reportée dans la littérature pour différents types de composants en fonction de la gamme spectrale (en énergie de photons et en longueur d'onde). Source : [Attwood1999]. Les revêtements multicouches sont représentés par des points pour des longueurs d'onde comprises entre 1 nm et 15 nm.

du matériau E. Cette période est répétée un certain nombre de fois dans l'empilement, qu'on appellera « nombre de périodes ». On utilisera également le terme « période » pour désigner l'épaisseur d'une période du revêtement multicouche (soit l'épaisseur de la couche A plus l'épaisseur de la couche E).

Le principe et le fonctionnement des revêtements multicouches ainsi que quelques résultats de la littérature seront présentés plus en détail en section 1.2.

1.1.3 Applications et exemples de systèmes d'imagerie dans le domaine XUV

1.1.3.1 Lithographie EUV

La photolithographie est très utilisée pour l'industrie des semi-conducteurs, particulièrement pour la fabrication de microprocesseurs. Elle permet de transférer un motif d'un masque vers un substrat, en formant une image réduite de ce masque sur le substrat. Avec la miniaturisation des circuits électroniques, on souhaite transférer des motifs les plus petits possibles. Cela est possible en diminuant la longueur d'onde utilisée. Auparavant, la longueur d'onde utilisée était dans le domaine proche ultraviolet, utilisant différentes raies d'émission du mercure par exemple, correspondant à des longueurs d'onde de plus en plus courtes (jusqu'à 193 nm). Depuis les années 1980, le développement de la lithographie dans le domaine extrême ultraviolet a été progressivement démarré afin de gagner encore en résolution. Les développements de la lithographie sont faits désormais pour une longueur d'onde de l'ordre de 13,5 nm.

De manière générale, un appareil de photolithographie est composé d'un illuminateur, éclairant le masque. Le masque est ensuite imagé via un objectif sur le substrat (wafer en silicium).

Pour une longueur d'onde de fonctionnement proche de 13,5 nm, les systèmes optiques utilisent des miroirs [Kinoshita1989], traités avec un revêtement multicouche (voir le paragraphe 1.2.3.1 pour plus de détails sur les revêtements pour la lithographie EUV). Afin que la résolution soit la meilleure possible, il est nécessaire que le système optique de lithographie soit bien corrigé des aberrations. Par

ailleurs, les surfaces optiques doivent être de très grande qualité.

Ces deux contraintes sont dues au fait que pour que le système soit limité par la diffraction (section 1.1.1.2), la moyenne quadratique de l'écart normal σ_Δ doit vérifier :

$$\sigma_\Delta \leq \frac{\lambda}{14} \tag{1.35}$$

L'écart normal RMS en sortie du système optique ne doit donc pas dépasser environ 1 nm. Ceci peut être d'autant plus difficile à atteindre que le nombre de miroirs dans le système optique est élevé, chaque surface apportant son lot de défauts de forme. Afin de corriger au mieux les aberrations, les miroirs sont donc souvent asphériques [Attwood1999]. Par ailleurs, on verra au paragraphe 1.2.3.1 que la réflectivité des revêtements reste de l'ordre de 70% maximum à ces longueurs d'onde. Afin que le système soit le plus efficace possible en terme de nombre de photons, il est souhaitable d'avoir le moins de miroirs possible.

L'objectif de Schwarzschild peut être utilisé comme optique de projection. Ce système optique est composé de deux miroirs sphériques, concentriques, le miroir primaire étant concave et le secondaire convexe. La pupille est placée dans le plan du centre de courbure commun aux deux miroirs. Il s'agit donc d'un système optique à symétrie de révolution, ce qui lui permet d'être intrinsèquement dénué de bon nombre d'aberrations de champ (coma, astigmatisme, etc.). Le choix du rapport entre les deux miroirs permet d'annuler l'aberration sphérique. L'objectif de Schwarzschild est donc naturellement un bon candidat tant que l'ouverture numérique n'est pas trop élevée [Shealy1993].

Dans ce contexte, différents systèmes basés sur un objectif de Schwarzschild ont été développés pour une longueur d'onde proche du seuil du silicium, par exemple le « 10X microstepper » à une longueur d'onde de 13,4 nm [Goldsmith1999]. Avec une ouverture numérique de 0,088 et un grandissement de $\times 10$, il présentait de faibles erreurs de forme permettant d'obtenir une résolution meilleure que 100 nm. En augmentant l'ouverture numérique et en gardant la même qualité des surfaces optiques, il devait donc être possible d'améliorer encore la résolution. C'est ce qui a été fait avec le développement d'un système optique d'ouverture numérique 0,3 : le MET3 (*micro-exposure tool*), qui permet d'obtenir une résolution meilleure que 30 nm [Naulleau2005] grâce à des optiques asphériques. Une nouvelle génération de MET est en cours de développement (ouverture numérique de 0,5) pour obtenir une résolution encore meilleure, théoriquement jusqu'à 8 nm [Glatzel2013].

1.1.3.2 Microscopie X

À la fin des années 1940 et le début des années 1950, le développement des microscopes à rayons X a été démarré via les travaux de recherche de Kirpatrick et Baez d'une part [Kirkpatrick1948] et Wolter d'autre part [Wolter1952] qui ont développé des sytèmes optiques X composés de miroirs en incidence rasante. Dès lors, la microscopie X s'est peu à peu développée [Kunz1990] parallèlement aux avancées sur les systèmes pour la lithographie mentionnés précédemment. Il est alors apparu que la microscopie X dans la fenêtre de l'eau serait d'un intérêt tout particulier pour la biologie, permettant de mettre en évidence de nouveaux types de contraste par rapport à la microscopie visible. Nous présentons dans la suite de cette partie deux grandes familles de microscopes X pour la biologie dans la fenêtre de l'eau : les microscopes à lentilles de Fresnel et les microscopes à miroirs multicouches. D'autres applications de la microscopie X sont bien entendu possibles, telle que l'étude du nanomagnétisme [Fischer2006] pour n'en citer qu'une.

De manière générale, un microscope est un système optique d'imagerie permettant l'observation d'objets de petite taille (haute résolution). Il est composé d'un système d'éclairage (le *condenseur*)

pour illuminer l'échantillon à observer, puis d'un objectif d'imagerie qui permet de former une image agrandie de l'échantillon sur un détecteur. Un microscope X nécessite donc le choix d'une source de photons X, d'un système optique permettant de mettre en forme l'éclairage de l'échantillon, d'un système optique permettant de réaliser l'étape de grandissement puis d'un détecteur.

Pour ce qui est des sources de photons X disponibles, de nombreux microscopes X sont actuellement installés sur ligne de lumière synchrotron (voir la section 3.1.2.1.2 dans le Chapitre 3 pour plus d'informations sur le fonctionnement d'un synchrotron) comme par exemple à l'ALS [Chao2005], à BESSY [Thieme1994], à NSLS [Jacobsen1991], à ALBA [Sorrentino2015], etc. Cependant, l'installation de tels microscopes sur synchrotron nécessite pour les utilisateurs de répondre à un appel à projet pour obtenir du temps de faisceau et utiliser le microscope. Plusieurs groupes de recherches ont donc démarré le développement de sources X compactes, qui permettent l'utilisation d'un microscope X directement en laboratoire [Wachulak2010]. Ces dernières ont l'avantage de fournir un éclairage spatialement incohérent ; le flux de ces sources de laboratoire est cependant bien plus faible que celui disponible dans de nombreux synchrotrons.

L'éclairage de l'échantillon peut être fait de deux façon :

— soit en « plein champ » : l'échantillon est éclairé simultanément dans son ensemble ;

— soit en mode balayage : l'échantillon est éclairé point par point, et l'image de l'échantillon est formée en balayant l'éclairage sur toute la zone d'intérêt.

Pour la suite, je ne développerai pas les microscope X à balayage et me concentrerai sur les microscopes plein champ, bien que les premiers permettent également d'obtenir de très bonnes résolutions [Jacobsen1991].

Il existe une très grande variété de microscopes X, tant pour la longueur d'onde d'utilisation, pouvant aller jusque dans les rayons X durs avec des microscopes à contraste de phase [Rizzi2013], ou du point de vue du design optique utilisé, comme avec les microscopes « sans lentille » [Sandberg2007] ou la ptychographie [Thibault2008, Vartiainen2016] par exemple. Ces dernières techniques exploitent le champ diffracté par l'échantillon et nécessitent un traitement numérique des images, donc de fortes puissances de calcul. Quelques techniques d'imagerie pour la microscopie sont décrites au Chapitre 9 de la référence [Als-Nielsen2011].

1.1.3.2.1 Microscope à lentilles de Fresnel

Avec le développement des composants diffractifs et les premières tentatives de leur utilisation pour la microscopie X [Niemann1976] dans les années 1970, les microscopes à lentilles de Fresnel [Schmahl1978] ont été peu à peu installés sur des lignes de lumière de nombreux synchrotrons. Le développement de la fabrication des lentilles à zones de Fresnel par faisceau d'électrons [Kern1984] a par la suite permis l'amélioration progressive des résolutions atteintes par ce type de microscope. Désormais, on peut trouver des microscopes X à lentilles de Fresnel commercialisés par la branche « microscopie X » de la société Zeiss [6], auparavant Xradia.

Les premiers microscopes X à lentilles de Fresnel permettaient d'obtenir des résolution de l'ordre de quelques dizaines de nm : le tout premier microscope X, installé à Göttingen au synchrotron BESSY permettait de visualiser des structures de 30 nm [Thieme1994]. Par la suite, les progrès réalisés pour la fabrication des lentilles à zones de Fresnel ont permis d'aboutir à une épaisseur de la dernière zone

6. voir `http://www.zeiss.com/microscopy/en_de/x-ray.html`

de 15 nm. Or, on a vu (voir paragraphe 1.1.2.2) que la résolution atteignable avec une lentille à zones de Fresnel est directement liée à l'épaisseur de la dernière zone (i.e. la zone la plus loin du centre du composant). Ces progrès de fabrication des lentilles de Fresnel ont ainsi démontré une résolution de 12 nm pour le microscope XM-1 installé à l'ALS [Chao2009]. Un schéma de ce microscope est donné en Figure 1.16.

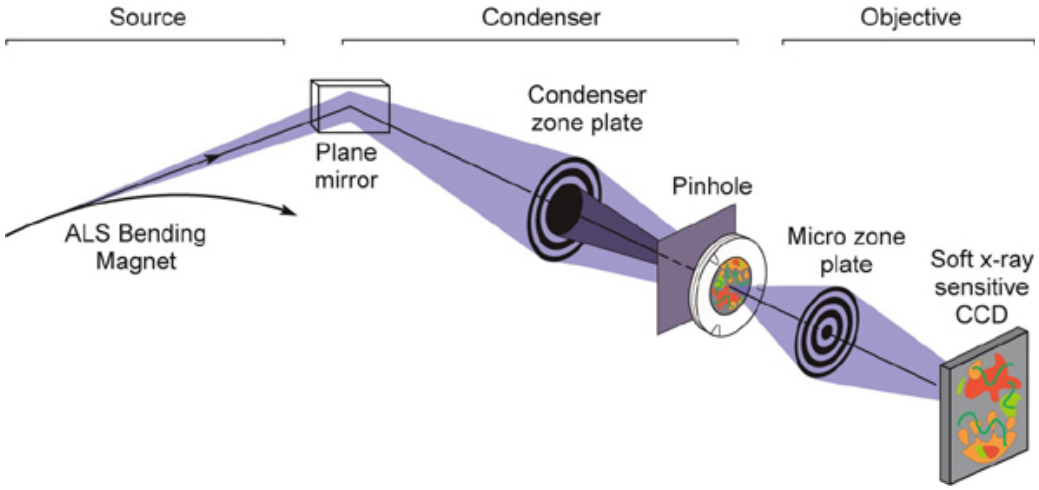


FIGURE 1.16 – Schéma du microscope XM-1, installé sur la ligne de lumière 6.1.2 de l'ALS. Source : Site internet du CXRO (`http://www.cxro.lbl.gov`)

Ce microscope est installé sur une source « aimant de courbure », qui est la source la moins cohérente spatialement sur synchrotron. L'éclairage sur l'échantillon peut donc être partiellement incohérent, permettant d'obtenir en théorie une résolution de $0{,}8 \times \Delta_{MZP}$ où Δ_{MZP} est l'épaisseur de la dernière zone [Chao2005]. Il contient une première lentille de Fresnel utilisée comme condenseur, puis une seconde (dont l'épaisseur de la zone extrême est de 15 nm) qui réalise l'image de l'échantillon sur un détecteur CCD. Ce microscope a été utilisé pour des grandissements de 2500 [Chao2005] jusqu'à 10600 [Chao2009].

D'autres groupes ont également développé des microscopes X à base de lentilles de Fresnel, notamment en Suède [Takman2007b] en utilisant une source à plasma. Le plasma est créé par un laser qui éclaire un jet de liquide (méthanol ou azote liquide) pour émettre du rayonnement dans la gamme des rayons X mous ou du rayonnement extrême UV. Une attention particulière doit être portée sur les débris provenant de la source afin de ne pas abîmer les composants optiques du microscope. Celui-ci est composé d'un condenseur à miroirs multicouches [Stollberg2006], et l'objectif d'imagerie est une lentille à zones de Fresnel. Ce microscope a permis l'obtention d'une résolution meilleure que 60 nm [Takman2007a].

Cet état de l'art de la microscopie X dans la fenêtre de l'eau à lentilles de Fresnel est bien entendu loin d'être exhaustif et donne juste un aperçu de certaines tendances actuelles. En particulier, on voit également se développer depuis plusieurs années des microscopes X permettant de réaliser de l'imagerie en 3D par tomographie [Haddad1994, Bertilson2009]. Pour plus de détails sur la microscopie X à composants diffractifs, on peut également consulter le Chapitre 9 « Soft x-ray microscopy with diffractive optics » de la référence [Attwood1999].

1.1.3.2.2 Microscope à miroirs

On a mentionné auparavant l'existence de microscopes à miroirs en incidence rasante (voir 1.1.2.3.1 et [Bridou2002]). Il existe également des microscopes dans la fenêtre de l'eau à miroirs en incidence proche de la normale. Ceux-ci sont généralement basés sur un design d'objectif de Schwarzschild, tout comme certains systèmes de lithographie EUV (voir 1.1.3.1). Comme mentionné auparavant l'objectif de Schwarzschild, composé uniquement de deux surfaces sphériques, peut être aplanétique si l'ouverture numérique n'est pas trop élevée [Shealy1993]. Pour des ouvertures numériques plus élevées, il est possible d'asphériser les miroirs (configuration Head). Ce type de microscope a l'avantage d'être achromatique et de disposer d'une grande distance de travail centimétrique, contrairement aux microscopes à lentilles de Fresnel dont la frontale est plutôt de l'ordre du millimètre.

Les premiers microscopes à objectifs de Schwarzschild ont été développés au début des années 1980 [Haelbich1980]. On trouve en fait relativement peu de microscopes Schwarzschild pour la fenêtre de l'eau, la plupart ayant été développés pour une longueur d'onde autour de 13 nm [Iketaki1994]. Plusieurs microscopes à objectifs de Schwarzschild ont été conçu pour la raie Kα du carbone, soit pour une longueur d'onde de 4,5 nm [Murakami1992]. Ces derniers ont montré une résolution de l'ordre de plusieurs centaines de nm.

Néanmoins, nous allons voir dans la section suivante que les réflectivités de revêtements multicouches dans la fenêtre de l'eau dépassent rarement 15%. L'efficacité en terme de nombre de photons est donc bien moindre pour les microscopes à miroirs en incidence normale que pour ceux dont l'objectif est une lentille de Fresnel seule. La problématique des défauts des surfaces (erreurs de forme, rugosité ; voir 1.1.1.3) qui détériorent la qualité de l'image produite et notamment la résolution est également un frein pour la réalisation de microscopes à miroirs dans la fenêtre de l'eau, donc à très courte longueur d'onde. Ainsi, même en ayant des erreurs de forme de l'ordre de 1 nm RMS seulement, l'écart normal RMS en sortie du microscope est de l'ordre de ou supérieur à la longueur d'onde [Nagata1994] ; on est donc bien loin de la limite de diffraction.

Pour cette raison, les miroirs en incidence proche de la normale ont été très peu utilisés en tant qu'objectifs d'imagerie pour des microscopes dans la fenêtre de l'eau, au profit des lentilles à zones de Fresnel. Ces dernières années, ils ont été utilisés davantage en tant que condenseur pour l'éclairage de l'échantillon, là encore sous la forme d'un objectif de Schwarzschild [Johansson2000, Stollberg2006].

1.2 Revêtements multicouches

Nous avons vu précédemment différents types de composants optiques existant pour focaliser les rayons X, parmi lesquels des substrats traités par un revêtement multicouche. Dans cette section, nous parlerons du principe de fonctionnement des revêtements multicouches et présenterons quelques résultats remarquables, notamment concernant des revêtements à courte période.

1.2.1 Histoire

Les études sur les revêtements multicouches ont débuté dans les années 1930, avec notamment W. Deubner [Deubner1930] qui tenta de fabriquer un des tous premiers empilements multicouches (en l'occurrence Au/Ag), malheureusement sans succès.

Le tout premier revêtement multicouche fabriqué avec succès fut un empilement Au/Cu, conçu par J. DuMond et J. P. Youtz en 1940 [DuMond1940]. Leur but était alors de développer une technique de mesure de la longueur d'onde dans le domaine des rayons X. Ils ont été les premiers à constater

le phénomène de diffusion entre les matériaux, les performances de leur revêtement s'étant dégradées très rapidement (la réflectivité du miroir a diminué de moitié en deux jours) [Chang1985].

Les rayons X et UV ont alors été quelque peu délaissés comme application possible des revêtements multicouches. Beaucoup d'études furent réalisées pour le domaine visible ou proche infrarouge, avec notamment le développement de traitements antireflet [DEP1939, Turner1950], de miroirs dichroïques [Widdop1953] ou de filtres pour sélectionner des longueurs d'onde [Turner1950].

Par la suite, dans la fin des années 1960 et le début des années 1970, l'étude et le développement de revêtements multicouches dans le domaine XUV ont été intensifiés : J. B. Dinklage a fabriqué et mesuré en diffraction X des multicouches Fe/Mg et Au/Mg de faible période (entre 3 nm et 5 nm) [Dinklage1967]. Le véritable essor des revêtements multicouches dans le domaine des rayons X a démarré grâce à E. Spiller qui proposa en 1972 de les utiliser en tant que revêtement réfléchissant pour les rayons X et UV en incidence normale [Spiller1972, Spiller1976].

Dès lors, de nombreuses applications ont engendré le développement des revêtements multicouches dans tout le domaine des rayons X et UV. Des revêtements multicouches ont ainsi été développés pour la microscopie X [Kirz1985, Underwood1986], ou pour la réalisation de lasers X [Ceglio1985], pour l'astronomie [Underwood1987, Keski-Kuha1985, Golub1985] et l'imagerie de plasma [Lowenthal1988, Bridou2002, Seely1994]. Parallèlement, concernant la métrologie des revêtements multicouches, des travaux ont été réalisés par Névot et collègues pour développer la réflectométrie en incidence rasante à rayons X-durs, et en déduire la structure précise (épaisseurs et rugosités interfaciales) de l'échantillon mesuré [Névot1980].

Les travaux concernant les empilements multicouches ont connu un essor à la fin des années 1980, avec le développement de la lithographie EUV [Hawryluk1988, Kinoshita1989]. On a alors pu voir des réflectivités meilleures que 50% [Barbee1985], les réflectivités mesurées jusqu'alors étaient rarement supérieures à 10%. Par la suite, les progrès des technologies de dépôts de couches minces ont permis à la fois d'améliorer les réflectivités pour la lithographie EUV, atteignant plus de 70%, mais aussi d'étendre les progrès aux autres applications des revêtements multicouches pour le domaine XUV.

Désormais, les recherches dans le domaine des revêtements multicouches se poursuivent afin de toujours améliorer les réflectivités des revêtements, mais permettent aussi d'élargir son champ d'applications pour les manipulations d'impulsions ultra-brèves [Bourassin-Bouchet2012] ou les revêtements multicouches à périodes extrêmement courtes [Windt2002, Ghafoor2006], pour les rayons gamma notamment [Brejnholt2014].

1.2.2 Principe de fonctionnement des revêtements multicouches

Comme mentionné à la section 1.1.2.3.2, le principe des miroirs multicouches interférentiels repose sur la création d'interférences constructives entre les réflexions à chaque interface d'un revêtement, constitué d'une alternance de couches de deux matériaux généralement, parfois trois (voir Figure 1.14). De telles interférences va permettre d'augmenter grandement la réflectivité par rapport à une interface simple. Dans la suite de cette section, on parlera principalement de revêtements multicouches périodiques à deux matériaux. Les principes et résultats sont généralisables pour les multicouches à trois matériaux, ou pour les revêtements apériodiques.

Dans la suite de cette section, nous allons considérer un revêtement multicouche périodique constitué de deux matériaux A et E, d'indices respectivement $n_A = 1 - \delta_A + i\beta_A$ et $n_E = 1 - \delta_E + i\beta_E$. Le matériau A est l'absorbeur (désigné également par le terme « réflecteur »), c'est un matériau lourd, à fort numéro atomique ; le matériau E est l'espaceur, c'est-à-dire un matériau à numéro atomique plus

faible et relativement transparent. Une période, d'épaisseur d, est constituée d'une couche de matériau A d'épaisseur e_A et d'une couche de matériau E d'épaisseur e_E. La période est répétée N fois ; dans la suite on notera « $[A/E]_N$ » pour parler d'une multicouche composée de N périodes de couches de matériaux A et E, A étant le matériau déposé en premier sur le substrat.

Pour caractériser des revêtements multicouches périodiques à deux matériaux, on peut utiliser le rapport d'épaisseurs Γ, défini par le rapport entre l'épaisseur du matériau absorbeur par la période :

$$\Gamma = \frac{e_A}{d} = \frac{e_A}{e_A + e_E} \tag{1.36}$$

Pour les revêtements multicouches pour les rayons X et UV, nous verrons que la période du revêtement doit être très courte. Le revêtement peut être assimilé à un cristal diffractif artificiel : les phénomènes d'interférences qui se produisent dans le revêtement sont analogues aux interférences entre les réflexions sur les différents plans atomiques de cristaux. On observera alors des « pics de Bragg », correspondant à des maxima d'intensité pour différents ordres de diffraction. La position de ces pics de Bragg dépend de la longueur d'onde, de la période du revêtement multicouche, ainsi que de l'angle de rasance.

On peut donc écrire la *loi de Bragg*, qui décrit la diffraction des rayons X par des cristaux, donc valable également dans le cas de revêtements multicouches. Ici, elle donne la condition pour obtenir des interférences constructives entre les réflexions aux interfaces d'un revêtement multicouche de période d, à la longueur d'onde λ et sous un angle de rasance θ :

$$2dn_{eff} \sin\theta = m\lambda \tag{1.37}$$

avec m l'ordre de diffraction et n_{eff} l'indice effectif du revêtement (moyenne pondérée par les épaisseurs relatives des couches).

Bien que composés de couches très minces, les revêtements multicouches pour le domaine XUV peuvent également être décrits en utilisant des propriétés à l'échelle macroscopique, comme les indices de réfraction des matériaux composant l'empilement. En particulier, dans le cas de revêtements multicouches, les photons voient une alternance de couches d'indices différents. Il y aura donc réfraction à chaque interface, ce qui conduit à la loi de Bragg corrigée [Ewald1986] :

$$2d \sin\theta \sqrt{1 - \frac{2\delta_{eff}}{\sin^2\theta}} = m\lambda \tag{1.38}$$

où $\tilde{n}_{eff} = 1 - \delta_{eff} + i\beta_{eff}$ est l'indice effectif, soit la moyenne pondérée des indices des matériaux de la multicouche. On a donc : $\tilde{n}_{eff} = \Gamma \cdot \tilde{n}_A + (1 - \Gamma) \cdot \tilde{n}_E$.

La loi de Bragg nous permet d'estimer la période du revêtement de manière à réfléchir une longueur d'onde donnée λ pour un certain angle de rasance θ. Par exemple, si l'on travaille à un angle d'incidence proche de la normale, on a alors $\sin\theta \approx 1$, soit $d \approx \lambda/2$ au premier ordre de Bragg. Dans le cas particulier des rayons X mous, la longueur d'onde est de l'ordre de quelques nm. Les épaisseurs des couches pour les revêtements pour ce domaine spectral sont donc très fines.

En pratique, les spectres de réflectivité d'un revêtement multicouche ne sont pas décrits par des pics discrets. On observe les pics de Bragg d'une largeur donnée (non nulle), deux pics de Bragg consécutifs étant séparés par des franges de Kiessig (voir Figure 1.17).

Deux pics de Bragg consécutifs sont séparés par N-2 franges de Kiessig (voir Figure 1.17), avec N le nombre de périodes, provenant d'interférences entre deux ondes réfléchies par la surface du revêtement multicouche d'une part et par la surface du substrat d'autre part.

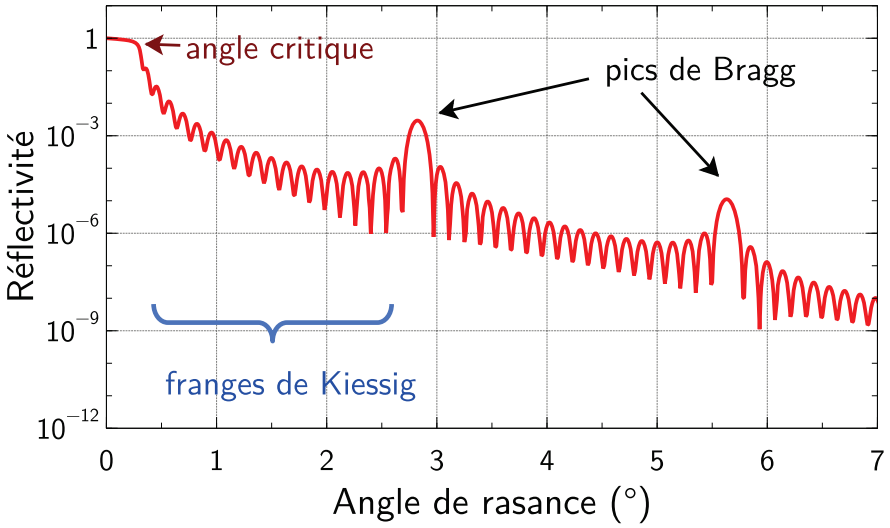


FIGURE 1.17 – Simulation de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence pour une multicouche $[Cr/Sc]_{20}$ à une énergie de 8,05 keV.

Les pics de Bragg sont décrits par une certaine largeur spectrale $\Delta\lambda$ en longueur d'onde ou ΔE en énergie, et de manière équivalente par une certaine largeur angulaire $\Delta\theta$. Ici, on est en présence d'interférences multiples, ainsi plus le nombre d'ondes interférant sera élevé, plus le pic correspondant aux interférences constructives sera fin. Autrement dit, plus le nombre de périodes est élevé, plus la largeur angulaire et spectrale des pics de Bragg sera faible, mais également plus les pics seront hauts (i. e. la réflectivité élevée). Le choix du nombre de périodes dans un empilement multicouche résulte donc d'un compromis entre la réflectivité que l'on souhaite (généralement la plus élevée possible) et la largeur spectrale ou angulaire nécessaire.

À partir d'un certain nombre de périodes, on rencontre également le phénomène de saturation : lorsque le nombre de périodes devient trop grand, l'épaisseur du revêtement aura dépassé la longueur d'atténuation des matériaux utilisés. Les photons ne pourront donc plus pénétrer jusqu'aux couches les plus profondes du revêtement, qui seront donc parfaitement inutiles. Il sera donc vain d'ajouter encore des périodes une fois la saturation atteinte : les photons ne verront qu'un nombre limité de couches et la réflectivité ne sera pas augmentée.

La réflectivité d'un revêtement multicouche peut être calculée de différentes manières, telles que la méthode matricielle [Abelès1950] ou récursive [Parratt1954]. E. Spiller et collègues ont montré qu'il est nécessaire que l'on ait une faible absorption moyenne et un bon contraste d'indice entre les deux matériaux A et E de la multicouche afin que la réflectivité du revêtement soit la plus haute possible [Spiller1972]. Par exemple, le facteur de réflexion en intensité $R_{E/A}$ pour une interface du matériau E vers le matériau A en incidence normale peut s'écrire :

$$R_{E/A} = \left|\frac{\tilde{n}_E - \tilde{n}_A}{\tilde{n}_E + \tilde{n}_A}\right|^2 = \frac{\Delta\delta^2 + \Delta\beta^2}{(2 - \delta_A - \delta_E)^2 + (\beta_A + \beta_E)^2} \tag{1.39}$$

avec : $\Delta\delta = \delta_A - \delta_E$ et $\Delta\beta = \beta_A - \beta_E$.

On peut donc maximiser $R_{E/A}$ en choisissant des matériaux A et E tels que $\Delta\delta$ soit le plus élevé possible, soit δ_A et δ_E les plus éloignés possible, et avec β_A et β_E les plus faibles possibles. Autrement dit, on veut également que l'absorption moyenne dans la multicouche soit la plus faible possible.

Dans le cas des rayons X, il peut être utile de choisir le matériau espaceur de manière à ce qu'il possède un seuil d'absorption dont l'énergie est légèrement supérieure à l'énergie de fonctionnement

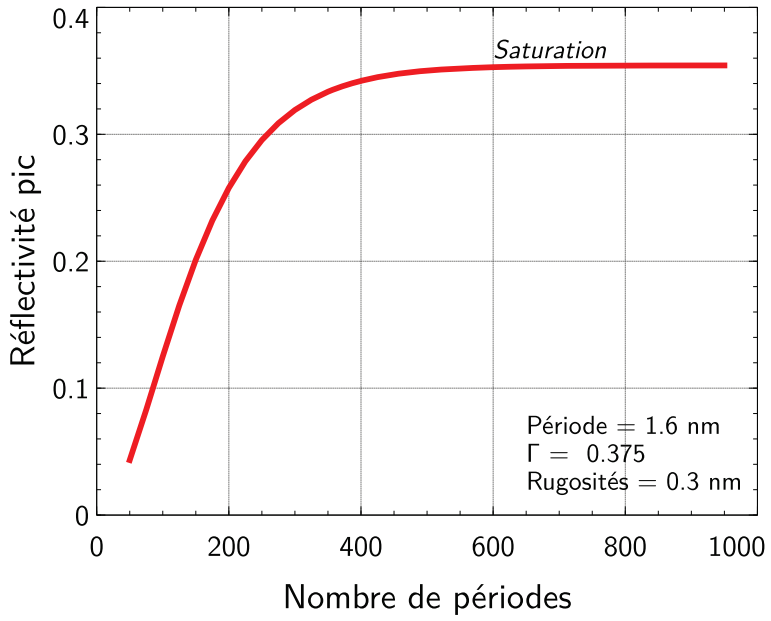


FIGURE 1.18 – Simulation de la saturation d'un revêtement multicouche Cr/Sc : réflectivité maximale d'une multicouche Cr/Sc en fonction de son nombre de périodes. La réflectivité est simulée pour un angle d'incidence de 13,5° et la réflectivité pic est mesurée à une énergie de photons de 397,8eV environ.

du revêtement. Ainsi, l'absorption sera faible dans ce matériau, et l'on pourra profiter de la résonance sur la partie réelle de l'indice (contraste d'indice plus élevé par rapport au matériau absorbeur).

Dans la pratique, les performances des revêtements multicouches sont limitées par la qualité des couches, notamment les paramètres suivants :

— la qualité des interfaces ;

— le respect de la périodicité du revêtement ; plus généralement, l'adéquation du revêtement effectivement fabriqué avec les épaisseurs des couches souhaitées.

L'écart d'une interface réelle par rapport à une interface parfaite peut être décrit par deux phénomènes : la rugosité et l'interdiffusion (voir Figure 1.19).

(a) (b) (c)

FIGURE 1.19 – Schéma des modèles d'interfaces : (a) interface idéale (b) interface avec de la rugosité (c) interface avec de l'interdiffusion.

On appelle *interface parfaite* ou *idéale* (voir Figure 1.19(a)) une interface entre deux matériaux pour laquelle la transition entre ces deux matériaux est parfaitement abrupte et le dioptre correspondant est parfaitement plan.

En pratique, on ne rencontre jamais d'interfaces parfaites. On parle de *rugosité* (voir Figure 1.19(b)) lorsque la transition entre les deux matériaux est toujours parfaitement nette mais non plane. La rugosité à une interface indique donc la présence de relief lors de la transition entre les deux matériaux.

La rugosité correspond à des hautes fréquences spatiales, typiquement supérieures à quelques dizaines de mm^{-1}. Par la suite, le terme de rugosité pourra également désigner la moyenne quadratique (ou *RMS*) σ de l'écart de l'interface réelle avec une interface plane parfaite de référence dans la limite des hautes fréquences spatiales. Dans le cas de revêtements multicouches, la rugosité aux interfaces (ou *rugosité interfaciale*) peut s'accumuler au fur et à mesure des couches. La rugosité de surface est alors plus élevée que celle du substrat sur lequel on a déposé le revêtement.

On peut rencontrer également le phénomène *d'interdiffusion* (voir Figure 1.19(c)). Dans ce cas, la transition entre les deux matériaux à leur interface n'est plus abrupte. Les deux matériaux peuvent se mélanger, créant ainsi une zone de transition pouvant être modélisée par un gradient d'indice.

Rien n'indique a priori que les deux interfaces dans une multicouche composée d'un matériau A et d'un matériau E sont identiques. En particulier, la rugosité interfaciale aux interfaces « A-sur-E » n'a aucune raison a priori d'être identique à la rugosité des interfaces « E-sur-A », et de même pour l'interdiffusion.

Dans la pratique, ces deux phénomènes peuvent exister simultanément. Ils contribuent individuellement à diminuer la réflectivité maximale que l'on peut atteindre avec un certain revêtement multicouche. La Figure 1.20 montre une simulation d'une multicouche Cr/Sc avec différentes valeurs de rugosités interfaciales (Figure 1.20(a)) ou différents cas d'interdiffusion Figure 1.20(b)). Dans la Figure 1.20(a), la réflectivité d'une multicouche Cr/Sc à 400 périodes de période 1,6 nm est simulée en fonction de l'énergie de photon à un angle d'incidence de 10°. Chaque courbe correspond à une valeur de la rugosité interfaciale ; la même valeur de rugosité a été utilisée pour toutes les interfaces. On remarque que la réflectivité pic a chuté de presque 50% lorsque la rugosité aux interfaces vaut seulement 0,3 nm. De manière analogue, la Figure 1.20(a) représente la réflectivité pour le même revêtement multicouche pour lequel on a simulé ici le phénomène d'interdiffusion à chaque interface (sans rugosité). L'interface est simulée par 40 couches d'épaisseur identique, l'épaisseur totale de l'interface étant indiquée dans la légende de la figure (de 0 à 0,6 nm). Ces 40 couches forment un gradient d'indice entre les deux matériaux de la multicouche [Windt1998] ; par exemple, pour l'interface « Sc-sur-Cr », on peut écrire les constantes optiques de la i^e couche n_i et k_i comme :

$$n_i = \frac{(41-i)\times n_{Cr} + i \times n_{Sc}}{41} \quad \text{et} \quad k_i = \frac{(41-i)\times k_{Cr} + i \times k_{Sc}}{41} \tag{1.40}$$

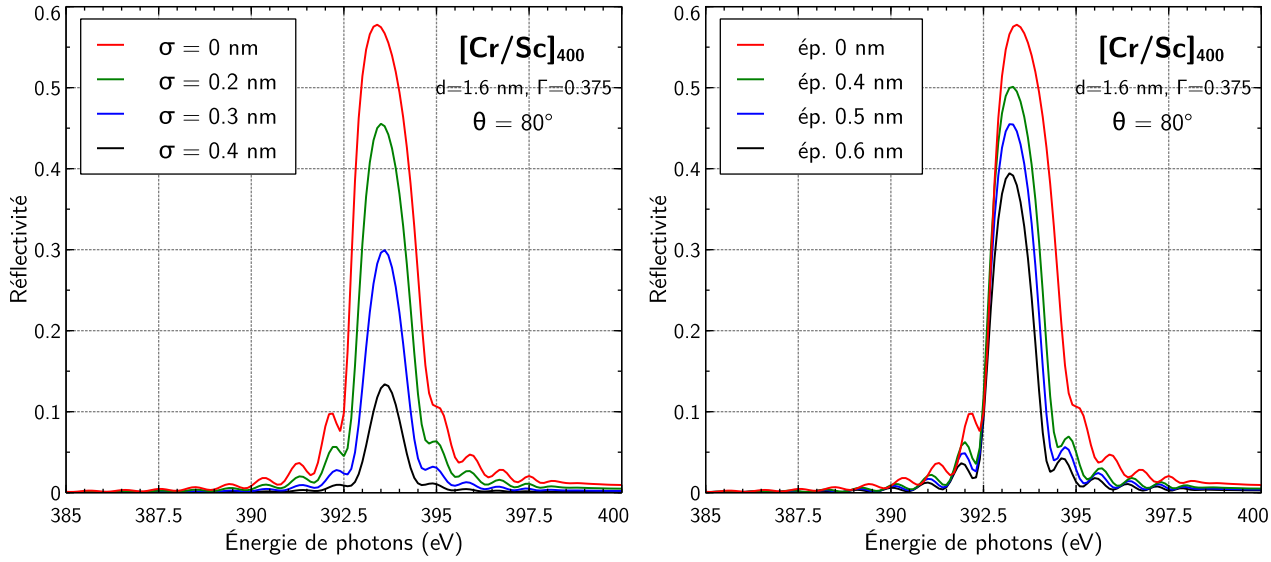
On voit donc qu'à la fois rugosité et interdiffusion contribuent à grandement détériorer la réflectivité atteignable en pratique. Il est donc particulièrement critique de pouvoir être capable de fabriquer des revêtements multicouches avec des interfaces les plus proches possible du cas idéal.

1.2.3 Quelques exemples de revêtements multicouches

Nous présentons ici quelques résultats concernant des revêtements multicouches.

1.2.3.1 Revêtements multicouches pour la lithographie EUV

Comme mentionné au paragraphe 1.2.1, les revêtements multicouches pour le domaine XUV ont connu leur essor grâce au développement de la lithographie dans le domaine extrême ultra-violet. Nous présentons ici quelques résultats ayant abouti aux meilleures réflectivités atteintes en incidence non rasante pour le domaine XUV. On a vu précédemment (voir paragraphe 1.1.3.1) que les systèmes optiques de lithographie EUV peuvent contenir de nombreux miroirs. Il est alors particulièrement



(a) (b)

FIGURE 1.20 – Simulation de la réflectivité d'une multicouche $[Cr/Sc]_{400}$ avec (a) différentes valeurs de la rugosité σ (b) simulation de l'interdiffusion pour différentes valeurs de l'épaisseur de l'interface.

critique de pouvoir fabriquer des revêtements ayant une réflectivité la plus haute possible, la transmission du système étant proportionnelle à R^n où R est la réflectivité d'un miroir et n le nombre de miroirs. Une augmentation, même faible, de la réflectivité R de chaque miroir peut donc conduire à une grande amélioration de l'efficacité radiométrique du dispositif.

Des revêtements multicouches ont été développés pour une longueur d'onde proche de 13,5 nm. Il a été déterminé que le molybdène et le silicium sont de bons candidats pour des multicouches dans cette gamme d'énergie. La présence du seuil $L_{2,3}$ du silicium (λ=12,4 nm) permet d'aboutir à de hautes réflectivités pour une longueur d'onde proche de 13,5 nm (puisqu'elle correspond à une énergie de photon juste en dessous du seuil du silicium).

Les premiers revêtements multicouches Mo/Si ont montré des réflectivités dépassant 50% : Kinoshita et collègues ont mesuré une réflectivité de 51% pour un revêtement Mo/Si à 30 périodes pour un angle d'incidence de 15° [Kinoshita1991]. Ils ont néanmoins noté que la réflectivité pic mesurée était plus faible que la réflectivité pic attendue (supérieure à 72% théoriquement) en raison d'un phénomène d'interdiffusion entre les deux matériaux. D'autres études ultérieures ont permis d'obtenir jusqu'à 63% de réflectivité à une longueur d'onde de 13,7 nm [Takenaka1995].

Parallèlement, des revêtements multicouches contenant du béryllium ont été également développées dans l'EUV afin de profiter de la présence du seuil d'absorption K du béryllium ($h\nu$ = 111 eV ou λ = 11,2 nm), incluant des multicouches Mo/Be, Ru/Be, Rh/Be et Nb/Be [Bakshi2009, Skulina1994], pour des longueurs d'onde vers 11,3 – 11,4 nm. Des réflectivités jusqu'à 70% ont été atteintes, pour un revêtement Mo/Be à une longueur d'onde de 11,3 nm [Bajt1999]. En raison du caractère toxique du béryllium, ce type de multicouches a été abandonné pour revenir au Mo/Si. Par ailleurs, le couple Mo/Si donne accès à une plus large bande passante [Attwood1999, Bakshi2009]. Il est également plus avantageux de travailler à une longueur d'onde un peu plus élevée afin de diminuer les contraintes sur la qualité des substrats (forme et rugosité). Les multicouches Mo/Si ont donc été préférées pour cette raison également.

Par la suite, plusieurs groupes ont développé des revêtements multicouches basés sur le couple

Mo/Si mais en y insérant des couches barrières afin de limiter l'interdiffusion. Il a ainsi été démontré que l'ajout de couches barrières en B_4C permettait de limiter l'interdiffusion et donc augmenter la réflectivité [Bajt2002]. Désormais, on trouve des revêtements multicouches Mo/Si avec une réflectivité supérieure à 70%.

1.2.3.2 Multicouches de faible période dans la fenêtre de l'eau

Des revêtements multicouches pour la fenêtre de l'eau ont été étudiés depuis les années 1990 pour diverses applications, notamment pour la microscopie [Stollberg2006], ou pour les miroirs pour les impulsions ultra-brèves [Guggenmos2013, de Rossi2015]. Du fait de l'absorption et du problème de la rugosité (voir paragraphe 1.2.2), les réflectivités pic atteintes en incidence quasi-normale dans cette gamme spectrale sont rarement au-dessus de 15%.

On rencontre différents systèmes multicouches dans la fenêtre de l'eau : Cr/Sc, W/Sc et W/B_4C pour la moitié basse énergie de la fenêtre de l'eau (énergie inférieure à 400 eV), et Cr/Ti, Cr/V et Ni/V pour la moitié haute énergie de la fenêtre de l'eau.

Dans la partie « basses énergies » de la fenêtre de l'eau ($h\nu$ entre 284 eV et environ 400 eV), on trouve plusieurs systèmes multicouches utilisant du Sc. En effet, la présence du seuil d'absorption L du Sc ($h\nu \approx 398{,}7$ eV) permet d'obtenir des réflectivités relativement élevées pour des multicouches contenant du Sc. Les réflectivités les plus élevées dans cette partie de la fenêtre de l'eau sont obtenues avec des multicouches contenant du Cr et du Sc. Une réflectivité de 1,8% a néanmoins été mesurée pour des multicouches W/B_4C [Seely1994] en incidence proche de la normale (10,2°) pour une longueur d'onde de 3,34 nm. Par la suite, les recherches ont été principalement axées autour du développement de multicouches Cr/Sc.

Il est assez délicat de comparer directement les valeurs brutes de réflectivités mesurées et reportées dans la littérature, tant les conditions peuvent être différentes (nombre de périodes utilisé, angle d'incidence plus ou moins proche de la normale, énergie de mesure, etc.). Nous donnons dans la suite de ce paragraphe un aperçu des différents résultats obtenus pour des multicouches Cr/Sc et leurs dérivés.

Les réflectivités maximales atteintes proches du seuil L du Sc pour une incidence normale ($\leq 5°$) allaient de quelques pourcents [Schäfers1998, Kuhlmann2002, Stollberg2006] à 15% dans de rares cas [Eriksson2003] voire même 17,3% [Schäfers2003]. Ces deux derniers résultats sont tout particulièrement remarquables, puisqu'avant 2003, les réflectivités maximales atteintes dans cette gamme d'énergie ne dépassaient pas 10%. Parallèlement, certaines études ont été faites pour réaliser des multicouches Cr/Sc apériodiques [Uspenskii2007] afin d'augmenter la largeur angulaire de la multicouche (et donc minimiser le risque, pour un système à deux miroirs, que les revêtements pour chaque miroir soient désaccordés). Cette augmentation de la largeur angulaire se fait cependant au détriment de la réflectivité pic.

De rares groupes ont réussi à augmenter les réflectivités en utilisant différentes techniques :

— l'ajout de couches barrières en B_4C [Gullikson2008, Prasciolu2014]. Les couches barrières en B_4C permettent à la fois de limiter l'interdiffusion (donc augmenter la réflectivité) et d'améliorer la stabilité thermique ;

— l'augmentation de la pression résiduelle [Ghafoor2008] ou l'introduction d'azote pendant le dépôt. Ceci a permis l'obtention de la plus haute réflectivité pour des multicouches Cr/Sc à 100 périodes (réflectivité pic de 11,5% à un angle d'incidence proche de 10°) et présage donc de très bons

résultats dans le cas où on augmenterait le nombre de périodes ;

— le polissage ionique au cours du dépôt (périodiquement, après le dépôt d'un certain nombre de périodes) [Guggenmos2014]. Celui-ci permet de limiter l'accumulation de rugosité interfaciale au cours du dépôt.

Le record de réflectivité dans la fenêtre de l'eau est à présent détenu par Eric Gullikson et collègues [Gullikson2008], qui ont mesuré une réflectivité de 32,1% pour une multicouche $Cr/B_4C/Sc$, avec un angle d'incidence de 9,2° et une énergie de 398 eV.

Dans la partie plus haute énergie de la fenêtre de l'eau, les résultats se font légèrement plus rares. On peut néanmoins noter des revêtements Cr/V avec des barrières en B_4C [Gullikson2008, Huang2016]. Là encore, pour ce dernier résultat, l'ajout de fines couches barrières de B_4C a permis la réduction de l'épaisseur de l'interface, ce qui donne accès à une plus haute réflectivité (24,3% à un angle de rasance de 42°) que sans les barrières.

1.3 Vers un microscope X à miroirs dans la fenêtre de l'eau

1.3.1 L'équipex Morphoscope

Le projet Morphoscope [7] a été mis en place par l'Agence Nationale pour la Recherche afin de créer et développer une plateforme dédiée à la biologie intégrative. Cette plateforme utilisera des instruments et techniques d'imagerie et d'analyses à la pointe de la technologie. L'Equipex Morphoscope fait intervenir de nombreux centres de recherche français, parmi lesquels le Laboratoire d'Optique et Biosciences (porteur du projet), le Laboratoire Charles Fabry, le synchrotron SOLEIL, le Centre de Recherche sur les Biotechnologies Marines, etc.

Il regroupe différents axes de recherche :

— l'installation de différents microscopes existants (microscope confocal, à super-résolution, multimodal, etc.)

— le développement de différents systèmes d'imagerie, incluant des microscopes à très haute résolution, des microscopes pour de l'imagerie rapide, etc.

Le rôle du Laboratoire Charles Fabry dans ce projet consiste à développer et fabriquer un microscope haute résolution à rayons X. Un tel microscope permettrait alors d'obtenir un nouveau contraste intéressant tout en proposant une haute résolution. La corrélation des informations ainsi obtenues avec d'autres techniques de microscopie pourrait alors conduire à des découvertes tout à fait intéressantes.

1.3.2 Microscopie pour la biologie

Il existe actuellement de nombreuses techniques de microscopie pour la biologie. Chaque technique a ses propres spécificités, et permet donc d'apprendre un type d'information particulier sur l'échantillon que l'on observe. On peut distinguer des microscopes optiques (longueurs d'onde allant de l'infrarouge au visible, en plus des microscopes X décrits précédemment) et des microscopes électroniques.

En ce qui concerne la microscopie optique, on a vu que la résolution δx que l'on peut atteindre avec un système optique d'ouverture numérique ON à la longueur d'onde λ vérifie :

$$\delta x = \frac{0{,}61\lambda}{ON} \tag{1.41}$$

7. Équipement d'excellence. Site web : `portail.polytechnique.edu/morphoscope`

Dans le cas d'un microscope classique fonctionnant dans le visible, la résolution est $\delta x \approx 200 - 300$ nm. Le Tableau 1.3 recense quelques données pour des techniques de microscopie classiquement utilisées pour la biologie.

TABLE 1.3 – Quelques techniques de microscopie et leurs caractéristiques

Microscopie	Classique	Confocale	Super-résolution	Électronique
Résolution latérale	200 nm	180 nm	jusqu'à 20 nm	quelques Å à quelques nm
Gamme spectrale	visible	visible	visible	(electrons)
3D possible ?	non	oui	oui	non
Échantillon	vivant mais ajout d'agents de contraste			fixé (résine ou cryogénisé)

De nombreuses techniques de microscopie dans le domaine visible se basent sur la détection de molécules fluorescentes, en général ajoutées artificiellement par l'observateur, mais aussi pour de rares cas il peut s'agir d'autofluorescence de structures déjà présentes dans la cellule. L'ajout de colorants ou de molécules fluorescentes peut être toxique pour la cellule. La microscopie électronique est quant à elle très contraignante pour la préparation de l'échantillon ; en raison de la faible longueur de pénétration des électrons dans l'échantillon, celui-ci doit être très mince.

Les techniques de super-résolution s'appuient sur le fait d'essayer de dépasser la limite de diffraction qui contraint la résolution autour de 200 nm pour les microscopes classiques dans le domaine visible. Pour cela, une grande variété de techniques sont développées, parmi lesquelles les microscopies PALM (*Photo-Activated Localization Microscopy* ou microscopie par localisation photoactivée) ou STORM (*STochastic Optical Reconstruction Microscopy* ou microscopie de reconstitution optique stochastique) qui utilisent la localisation à très haute précision de molécules fluorescentes. Suivant les techniques, des résolutions de l'ordre de 20 à 50 nm ont été mesurées. On peut se reporter à la référence [Huang2009] pour plus de détails sur les techniques de microscopie à super-résolution.

1.3.3 Intérêts de la microscopie X dans la fenêtre de l'eau à miroirs

Quel serait alors l'intérêt d'un microscope X à miroir pour la biologie ? La microscopie X pourrait servir d'intermédiaire entre la microscopie optique conventionnelle et la microscopie électronique, offrant simultanément une assez haute résolution et un contraste naturel sans besoin d'ajouter des marqueurs artificiels. La corrélation des informations apportées par ce contraste inédit et des informations apportées par d'autres microscopies (comme le traçage de certaines molécules particulières par fluorescence) permettra certainement des découvertes intéressantes.

On a mentionné auparavant (section 1.1.2.1) le caractère toxique car ionisant des rayons X pour un échantillon biologique. Comme pour la microscopie électronique, l'échantillon devra être fixé pour que les dommages liés aux radiations n'appariassent pas sur l'image produite. L'échantillon doit donc être congelé, et placé dans un cryostat. Tout l'intérêt d'un microscope X à miroirs est alors dans le fait qu'un choix approprié de son schéma optique peut permettre d'avoir une longue distance de travail (plusieurs centimètres), contrairement aux microscopes à lentille de Fresnel dont la distance de travail est typiquement de l'ordre du millimètre, voire en dessous. La mise en place de l'échantillon inclus dans un cryostat pourra donc se faire beaucoup plus facilement avec un microscope à miroirs.

L'étude d'échantillons biologiques dans la fenêtre de l'eau n'est cependant pas une spécifictié du microscope. On pourra ouvrir ses champs d'applications, comme par exemple pour l'étude de

matériaux ou du nanomagnétisme. Il suffira alors d'adapter les revêtements multicouches pour qu'ils soient compatibles avec la longueur d'onde d'utilisation.

Le développement d'un tel microscope nous permettra de repousser les limites de ce que l'on sait faire au laboratoire. En effet, il nécessite de résoudre un certain nombre de défis, parmi lesquels :

— le développement et la métrologie de revêtements multicouches à courte période ;

— la fabrication et la métrologie de substrats avec un excellent état de surface (forme et rugosité) ;

— la conception d'un schéma mécanique permettant la tenue, la stabilité et le réglage à l'échelle nanométrique des différents composants optiques.

Ces différents points clés seront abordés dans les chapitres suivants. On parlera dans le Chapitre 2 de la conception et l'optimisation du schéma optique du microscope pour garantir à la fois une haute résolution et un dispositif efficace en terme de nombre de photons. Le Chapitre 3 traitera d'études de revêtements multicouches à très courte période, notamment en vue de déterminer la structure la plus réfléchissante à utiliser pour le microscope. Enfin, le Chapitre 4 détaillera les défis liés à la fabrication du microscope : la fabrication et la métrologie de ses surfaces optiques, sa mécanique de tenue et les implications sur les revêtements multicouches de la géométrie du microscope.

Chapitre 2

Solutions optiques pour la réalisation d'un microscope X

Dans ce chapitre, nous allons voir comment concevoir un microscope X à miroirs pour la fenêtre de l'eau. Nous parlerons des différentes étapes du processus en vue de la réalisation d'un tel système et présenterons les différentes familles de solutions optiques qui ont été envisagées. Enfin, nous montrerons le chemin emprunté pour arriver jusqu'au design final optimisé du microscope et calculerons les tolérances associées.

2.1 Point de départ pour l'élaboration du schéma optique

De quoi est composé un microscope ? Généralement, un microscope dispose d'un premier élément optique servant à l'illumination de l'échantillon, puis d'un second, l'objectif, servant à réaliser l'imagerie sur un détecteur. La Figure 2.1 représente une vue schématique de ce à quoi doit ressembler le microscope X que nous voulons concevoir.

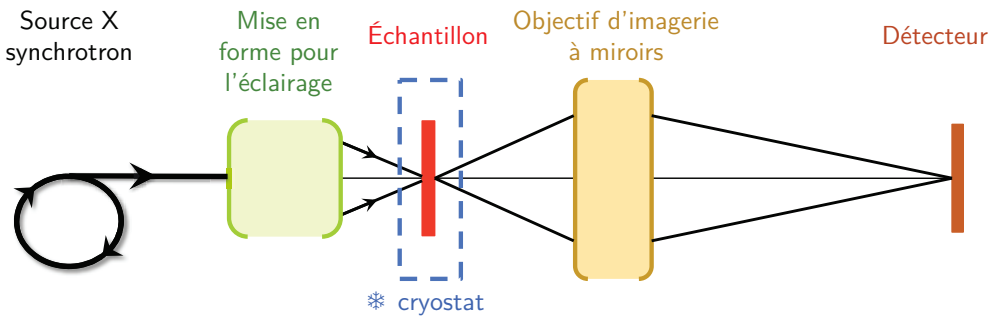


Figure 2.1 – Schéma de principe du microscope.

La microscope sera utilisé sur une ligne de lumière synchrotron. Il devra disposer d'un système optique de mise en forme du faisceau dédié à l'éclairage de l'échantillon, notamment pour le contrôle de la cohérence spatiale. Dans le cadre de cette thèse, nous ne nous sommes pas intéressés à la conception du système d'éclairage de l'échantillon.

Dans toute la suite de ce manuscrit, il sera question du développement de l'objectif d'imagerie du microscope. L'objectif doit réaliser la conjugaison entre l'échantillon (plan objet) et le détecteur (plan image). Les modalités de cette conjugaison vont être précisées par le cahier des charges.

2.1.1 Élaboration du cahier des charges

La première étape pour concevoir le microscope désiré est d'établir précisément son cahier des charges. Pour cela, on a besoin de spécifier différents paramètres :

— la longueur d'onde d'utilisation ;

— la résolution souhaitée ;

— l'ouverture numérique ;

— le grandissement ;

— le champ.

Nous allons détailler dans la suite la détermination de ces différents paramètres pour le cahier des charges.

2.1.1.1 Longueur d'onde d'utilisation

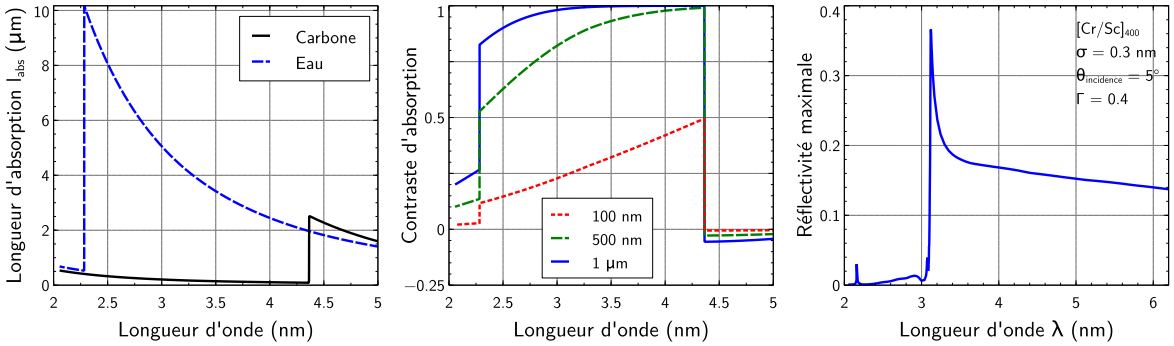
Le choix de la longueur d'onde d'utilisation résulte d'un compromis entre différents aspects à prendre en compte :

1. on souhaite avoir la meilleure résolution possible (directement proportionnelle à la longueur d'onde d'après le Chapitre 1) ;
2. la transmission de l'objectif de microscope doit également être la meilleure possible, et la réflectivité maximale des revêtements multicouches qui vont être utilisés dépend directement de la longueur d'onde.

Par ailleurs, des aspects supplémentaires sont à considérer dans le cas où l'on veut utiliser le microscope pour imager des échantillons biologiques :

3. on souhaite ne pas trop détériorer l'échantillon, c'est-à-dire limiter la dose de rayons X qu'il reçoit. À flux égal sur le détecteur, on a donc intérêt à choisir une longueur d'onde pour laquelle l'absorption dans l'échantillon est la plus faible possible ;
4. on souhaite également le contraste le plus fort possible pour l'observation de cellules biologiques, donc entre le carbone (contenu dans les structures de la cellule) et l'eau (composant principal de la cellule).

La Figure 2.2 montre différentes tendances possibles suite aux critères mentionnés précédemment. En effet, si l'on veut minimiser la dose reçue par l'échantillon, la Figure 2.2(a) nous indique qu'il faut plutôt utiliser une courte longueur d'onde. À l'inverse, si l'on souhaite maximiser le contraste d'absorption entre l'eau et le carbone, il vaudra mieux se placer près des grandes longueurs d'onde de la fenêtre de l'eau (voir Figure 2.2(b)). Enfin, la Figure 2.2(c) montre la réflectivité pic de multicouches Cr/Sc en fonction de la longueur d'onde d'utilisation. Cette réflectivité pic a été calculée en faisant varier la période de la multicouche en fonction de la longueur d'onde selon la loi de Bragg corrigée (voir l'équation (1.38) dans le Chapitre 1), et en gardant un rapport d'épaisseurs Γ, un angle d'incidence θ et une rugosité aux interfaces σ constants. Cette Figure indique donc que pour maximiser la réflectivité des miroirs, donc la transmission de l'objectif, la longueur d'onde optimale se situerait au milieu de la fenêtre de l'eau, juste au-dessus du seuil L du Sc (λ=3,11 nm). Ce dernier critère n'est absolument pas à négliger : pour un système optique composé de deux miroirs ou plus, la moindre diminution de la réflectivité par miroir peut engendrer une perte importante de la transmission du système entier. Ceci pourra nécessiter un long temps d'intégration pour faire une image, et donc une forte dose de



(a) (b) (c)

FIGURE 2.2 – Détermination de la longueur d'onde d'utilisation : (a) Longueur d'atténuation dans l'eau et le carbone en fonction de la longueur d'onde ; (b) Contraste entre l'eau et le carbone pour différentes épaisseurs en fonction de la longueur d'onde (voir aussi la Figure 1.9 du Chapitre 1) ; (c) Réflectivité maximale de multicouches Cr/Sc en fonction de la longueur d'onde d'optimisation.

rayonnement absorbé par l'échantillon. Par ailleurs, on doit aussi garder en tête que plus la longueur d'onde sera courte, plus l'influence de la rugosité et des erreurs de formes des substrats sera importante.

Finalement, il est apparu plus judicieux de choisir la longueur d'onde qui permettait de maximiser le flux en sortie du microscope, c'est-à-dire celle pour laquelle la réflectivité des revêtements multicouches est la plus élevée. Dans ce chapitre, nous choisirons de travailler avec une énergie de fonctionnement relativement proche (et en dessous) du seuil L du Sc : 395 eV. Ceci correspond à une longueur d'onde de 3,14 nm. Par la suite, la valeur exacte de cette énergie ou longueur d'onde de travail pourra être optimisée par l'étude des revêtements multicouches. Cette optimisation n'induira qu'une faible variation de la longueur d'onde et n'aura donc pas d'incidence sur le design optique que l'on aura optimisé ici à la longueur d'onde de 3,14 nm.

2.1.1.2 Résolution et ouverture numérique

Maintenant que nous connaissons la longueur d'onde qui sera utilisée pour le microscope, il convient de déterminer la résolution désirée et donc l'ouverture numérique du microscope.

Dans un premier temps, nous avons visé une **résolution** objet de 10 nm, soit approximativement le record en terme de résolution obtenu pour un microscope X dans la fenêtre de l'eau [Chao2009]. Nous allons voir par la suite que cette valeur ne sera pas atteignable en raison des erreurs de forme des substrats (paragraphe 2.3.1). Néanmoins, ces premiers calculs nous permettront de déterminer le type de solution optique qui garantira le meilleur compromis entre qualité optique de l'image, efficacité en terme de nombre de photons et faisabilité (des surfaces optiques, de la mécanique, des revêtements multicouches).

On considère donc pour les deux premières sections de ce chapitre que l'on souhaite obtenir une résolution objet δx de 10 nm. Nous parlerons ici de la résolution comme définie par la fréquence de coupure de la FTM (voir paragraphe 1.1.1.1 du Chapitre 1). Ainsi, en éclairage incohérent :

$$\delta x = \frac{\lambda}{2ON_{obj}} \tag{2.1}$$

où ON_{obj} est l'ouverture numérique objet du microscope. Avec $\delta x = 10$ nm et $\lambda = 3{,}14$ nm, on obtient

que l'ouverture numérique objet doit être :

$$ON_{obj} = \frac{\lambda}{2\delta x} = 0{,}157 \tag{2.2}$$

2.1.1.3 Grandissement et champ objet

Afin de déterminer maintenant quel grandissement est nécessaire et quel champ objet on désire, nous avons besoin de quelques informations sur les détecteurs existant pour les rayons X. Il existe une grande variété de détecteurs compatibles avec la gamme spectrale des rayons X mous. Après quelques recherches chez différents fournisseurs (Princeton Instruments, Andor, etc.), on trouve que plusieurs détecteurs présentent une taille de pixel de 13,5 μm. Cette valeur sera utilisée pour la suite. À titre indicatif, on donne en Table 2.1 quelques exemples de détecteurs existant pour la gamme spectrale des rayons X mous. On considèrera également que l'on choisit un détecteur de taille 2048 pixels × 2048 pixels.

TABLE 2.1 – Principales caractéristiques de quelques détecteurs pour la fenêtre de l'eau (« back illuminated CCD »)

Constructeur	**Princeton Instruments**		**Andor**	
Modèle	PIXIS-XO	PI-MTE	iKon-L SY	Classic SX
Gamme spectrale	30 eV–10 keV	1,15 eV–9 keV	10 eV–10 keV	10 eV–10 keV
Taille du pixel	13,5 μm	13,5 μm	13,5 μm	13,5 μm
Taille du capteur (pixels^2)	2048×2048	2048×2048	2048×2048	2048×2048
Dynamique	16 bits	16 bits	16 bits	16 bits
Rendement quantique @400eV	55%	55%	75%	75%
Courant d'obscurité ($e^-/pix/s$)	0,002 @-60°C	0,05 @-40°C	0,0175 @-55°C	non indiquée
Profondeur du puits	100 ke^-	100 ke^-	100 ke^-	100 ke^-

Le grandissement de l'objectif du microscope doit être choisi de sorte que l'échantillonnage par le détecteur permette de conserver la résolution annoncée de 10 nm. Pour cela, le théorème de Shannon indique que la fréquence d'échantillonnage ν_{ech} doit être au moins deux fois supérieure à la fréquence maximale, désignant ici la fréquence de coupure ν_c de l'objectif. Autrement dit :

$$\nu_{ech} = 2 \times \nu_c = 2 \times \frac{2ON_{img}}{\lambda} \tag{2.3}$$

ou de manière équivalente :

$$a_{pix} = \frac{1}{2}\delta x' = \frac{1}{2}\delta x \times g_y \tag{2.4}$$

où a_{pix} est la taille du pixel et g_y le grandissement de l'objectif du microscope. Avec $a_{pix} = 13,5$ μm et $\delta x = 10$ nm, on trouve que le grandissement doit être $g_y = 2700$.

En ce qui concerne le **champ objet**, on suppose que l'on utilisera un détecteur de dimensions 2048 pixels × 2048 pixels. Côté « objet », cela correspond à un carré de côté :

$$y_{tot} = 2048 \times \frac{a_{pix}}{g_y} = 2048 \times \frac{\delta x}{2} = 10{,}24\ \mu m \tag{2.5}$$

Par la suite, pour les simulations, nous utiliserons un champ objet maximal y_{obj} correspondant à la demi diagonale de ce carré :

$$y_{obj} = \frac{\sqrt{2}}{2} y_{tot} \approx 7{,}24\ \mu m \tag{2.6}$$

2.1.1.4 Récapitulatif du cahier des charges

En plus des paramètres calculés précédemment, le système optique devra satisfaire des critères de faisabilité (tolérances d'alignement pas trop strictes, encombrement raisonnable, surfaces optiques faisables et compatibles avec les revêtements multicouches, etc.). En particulier, on souhaite que le microscope dispose d'une distance de travail suffisamment confortable pour l'insertion du cryostat qui contiendra l'échantillon. Celle-ci devra être centimétrique.

Les principaux paramètres du cahier des charges sont regroupés dans la Table 2.2.

Table 2.2 – Récapitulatif du cahier des charges.

Paramètre	**Valeur**
Résolution	10 nm
Ouverture numérique	0,157
Grandissement	2700
Champ objet	7,24 μm
Distance de travail	quelques cm
Encombrement	$< 2 - 3$ m

2.1.2 Outils pour la simulation et l'optimisation du design optique

Maintenant que le cahier des charges a été établi, nous allons pouvoir étudier et optimiser le schéma optique de l'objectif du microscope. Pour cela, en fonction du type de solution choisi (voir le paragraphe 2.1.3), la première mise en place des éléments composant le système est dans un premier temps effectuée par des calculs dans le domaine paraxial, c'est-à-dire en faisant l'approximation de Gauss pour laquelle les rayons lumineux passent près de l'axe optique avec un faible angle par rapport à cet axe. Ces calculs nous permettent de positionner grossièrement les différents éléments de manière à s'approcher au mieux dans un premier temps du cahier des charges : obtenir la bonne conjugaison, avoir une ouverture numérique permettant la résolution souhaitée, etc. Pour des systèmes relativement simples, il est possible également de choisir certains paramètres du système de sorte à annuler certains termes d'aberration. Ce premier schéma optique servira de point de départ pour l'optimisation par ordinateur.

Le système optique est ensuite évalué puis optimisé en utilisant un logiciel de conception optique, en l'occurrence le logiciel OSLO® (Optics Software for Layout and Optimization) de la société Lambda Research Corporation [1].

Le logiciel OSLO est un logiciel permettant le calcul de la propagation d'un certain nombre de rayons de manière séquentielle à travers différentes surfaces qui composent le système optique étudié. L'étude de la manière dont les rayons se propagent à travers le système optique permet de définir sa qualité optique. Le logiciel dispose de différents outils pour définir le système, quantifier et optimiser ses performances optiques. Ces différents points seront rapidement décrits dans la suite de ce paragraphe.

Tout d'abord, la **définition géométrique** d'un système optique se fait par la saisie des informations concernant les différentes surfaces qui le composent, dans l'ordre dans lequel les rayons vont les voir. Un exemple est donné en Figure 2.3. On indique notamment le rayon de courbure de la surface considérée (colonne « RADIUS »), son « demi-diamètre » (rayon d'ouverture ; colonne « APERTURE

1. `www.lambdares.com/oslo`

RADIUS »), la distance entre cette surface et la surface suivante (colonne « THICKNESS ») et le milieu qui suit cette surface (verre, air, surface réfléchissante, etc. ; colonne « GLASS »). Il faut également définir les conditions de fonctionnement du système optique (longueur d'onde, champ) ainsi que la position de la pupille (représentée par la mention « AST » dans la liste des surfaces) et l'ouverture.

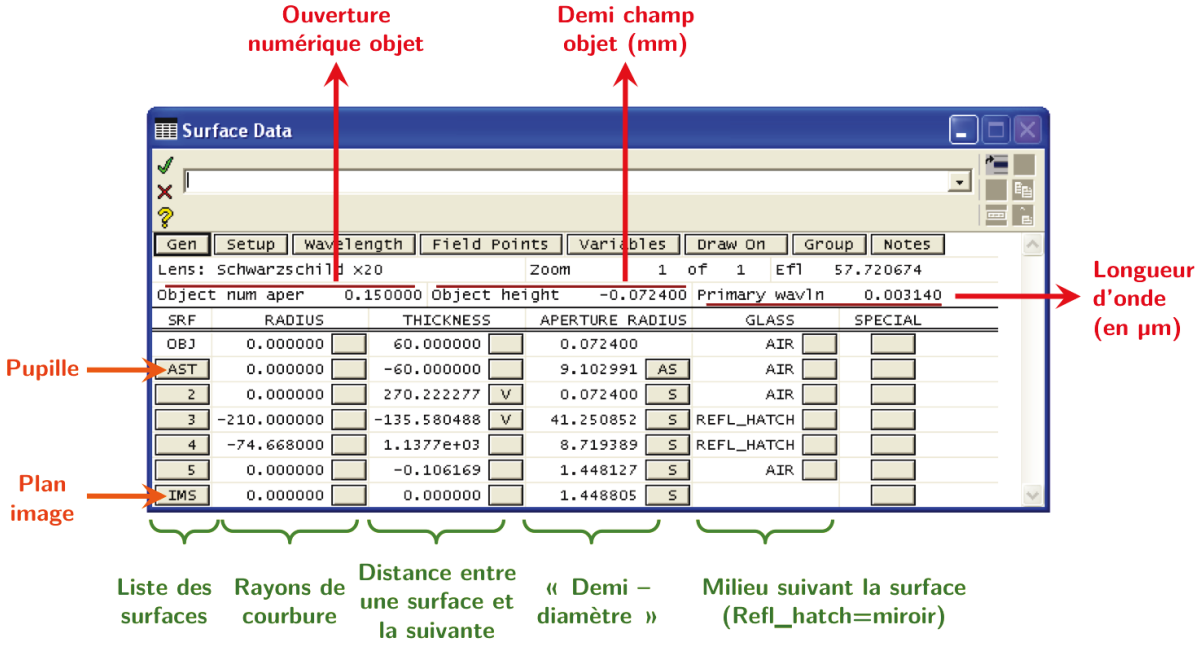


FIGURE 2.3 – Un exemple de système optique défini par une séquence de plusieurs surfaces.

Le système optique peut ensuite être **évalué** de différentes façons. Nous ne présentons ici que les méthodes qui vont être utilisées dans la suite de ce manuscrit. Le logiciel OSLO permet de calculer le « spot-diagramme », c'est-à-dire la répartition des impacts dans le plan image d'un faisceau de rayons traversant le système optique. Les rayons de ce faisceau sont choisis de sorte à former une grille dans la pupille. L'énergie portée par chaque rayon est proportionnelle à la sous-surface qu'il représente dans le plan de la pupille.

Afin de pouvoir donner un critère quantitatif sur ce tracé, il est possible de calculer l'énergie encerclée de la tache image correspondante. Ainsi, OSLO calcule pour cette tache image la proportion de l'énergie incluse dans un cercle en fonction du rayon de ce cercle. Ceci permet de donner une estimation du rayon de la tache : par analogie avec un système optique limité par la diffraction, on considèrera que le rayon de la tache ρ sera tel qu'un cercle de rayon ρ contiendra 84% de l'énergie. Pour ces calculs, le logiciel peut prendre en compte deux approches (voir le paragraphe 1.1.1.2 du Chapitre 1) :

— soit l'approche diffractive dans le cas de faibles aberrations : le calcul est alors fait d'après la PSF (calculée par transformée de Fourier) ;

— soit l'approche géométrique dans le cas de fortes aberrations : le calcul est alors fait d'après le spot-diagramme.

La surface d'onde étant perpendiculaire aux rayons, le logiciel OSLO peut également calculer la surface d'onde, dans le plan image par exemple. On peut ensuite avoir accès à la moyenne quadratique de l'écart normal.

L'**optimisation** d'un système optique se fait en choisissant parallèlement un certain nombre de variables (rayons de courbure, distances, etc.) et en construisant une fonction de mérite adaptée

qu'OSLO va chercher à réduire le plus possible au fur et à mesure des itérations en modifiant la valeur des variables. Le choix d'une fonction de mérite (appelée aussi fonction d'erreur) adaptée dépend de ce que l'on souhaite. Une fonction de mérite regroupe un certain nombre d'opérandes associées à un certain poids ; elle est la somme quadratique pondérée de ces différentes composantes. La minimisation de la fonction d'erreur lors de l'optimisation permettra alors d'annuler ou de minimiser certaines grandeurs, telles que des coefficients d'aberrations, le rayon RMS de la tache image, etc. Il existe plusieurs fonctions d'erreur définies par défaut dans OSLO. Celle que nous allons utiliser dans la suite permet de minimiser le rayon RMS de la tache image pour plusieurs points du champ que l'on aura spécifié préalablement. Nous utiliserons également au début des optimisations la fonction de mérite contenant les coefficients d'aberration du 3^{e} et 5^{e} ordre. Il est également possible d'ajouter manuellement des contraintes additionnelles dans la fonction de mérite, par exemple pour fixer la distance focale du système optique, le grandissement de la conjugaison étudiée, etc.

Enfin, il est possible de **tolérancer** le système optique que l'on a optimisé afin de déterminer si la solution que l'on a trouvée est bien faisable et robuste à d'inévitables écarts (de distances, rayons de courbure, etc.) par rapport au cas idéal ou si les contraintes sont trop difficiles à tenir. Pour cela, différents principes peuvent être implémentés dans OSLO :

— les paramètres dont on étudie la tolérance sont perturbés. On étudie alors l'influence de ces perturbations sur la qualité du système (via sa fonction d'erreur) ;

— on peut définir un critère donnant la variation maximale tolérable de la fonction d'erreur et OSLO peut calculer pour chaque paramètre individuellement la tolérance associée.

Pour ces deux cas, chaque paramètre (distances, rayons de courbure, etc.) est étudié individuellement. On doit donc en tenir compte pour la définition du critère sur la fonction d'erreur : le système optique doit rester correct dans le cas où tous les paramètres sont perturbés simultanément. Une fois les calculs des tolérances effectués, on peut simuler l'influence de perturbations simultanées sur tous les paramètres tolérancés par une analyse de Monte Carlo. Celle-ci nous permettra de vérifier que la probabilité d'obtenir un système optique ne répondant pas au cahier des charges reste relativement faible.

Pour certains systèmes optiques, il peut être possible de régler expérimentalement certains paramètres, comme par exemple la position du détecteur. Dans OSLO, ces paramètres ajustables sont désignés par le terme « variables compensatrices », et permettent bien souvent d'assouplir les tolérances sur les autres grandeurs.

2.1.3 Présentation des différentes familles de solutions possibles

Afin de répondre au cahier des charges exposé précédemment, nous avons étudié différentes solutions optiques, d'abord par calculs « à la main » puis grâce au logiciel OSLO. Nous avons choisi de baser le design optique de l'objectif du microscope sur un objectif de **Schwarzschild**.

Un objectif de Schwarzschild est constitué de deux miroirs sphériques concentriques. On place en général la pupille dans le plan du centre de courbure. Grâce à cette géométrie, la plupart des aberrations sont annulées : en effet, le dispositif est alors à symétrie centrale autour du centre de courbure commun des deux miroirs (et à symétrie de révolution pour un point sur l'axe). Seules les aberrations respectant ces symétries seront présentes, telles que l'aberration sphérique et la courbure de champ. Nous verrons par la suite qu'un choix judicieux des rayons de courbure des deux miroirs permettra d'annuler l'aberration sphérique du troisième ordre, améliorant donc les performances optiques de ce

système. Par ailleurs, la distance de travail du Schwarzschild est déterminée par la distance entre l'objet et la pupille. Cette distance pourra être choisie comme on le désire ; elle sera de plusieurs dizaines de millimètres. Le Schwarzschild semble donc être tout indiqué pour répondre à notre cahier des charges.

Pour l'objectif d'imagerie du microscope, différents types de solutions contenant un Schwarzschild ont été envisagées :

— un objectif de Schwarzschild seul, à fort grandissement ;

— un objectif de Schwarzschild à grandissement plus modéré suivi d'un troisième miroir sphérique participant au grandissement ;

— un objectif de Schwarzschild à grandissement modéré, suivi d'un scintillateur permettant de réaliser une conversion des rayons X en lumière visible, puis d'un système optique visible participant également au grandissement.

Ces trois types de solutions sont étudiées et comparées en détails dans la section suivante.

2.2 Détermination de la famille de solution la plus adaptée

2.2.1 Objectif de Schwarzschild seul

Le schéma optique le plus simple consiste à utiliser un objectif de Schwarzschild seul. En effet, on a dit que sa géométrie permettait d'annuler une grande partie des aberrations. Les notations que nous allons utiliser sont données en Figure 2.4. En particulier, on va noter :

— M_1 et M_2 respectivement les miroirs primaire et secondaire et C leur centre de courbure commun ;

— A la position de l'objet et A′ la position de l'image ;

— y le champ objet et y′ le champ image ;

— $ON_{obj} = \sin\alpha$ l'ouverture numérique objet et $ON_{img} = \sin\alpha'$ l'ouverture numérique image ;

— S_1 et S_2 les sommets de M_1 et M_2 ;

— R_1 et R_2 leurs rayons de courbures en valeur algébrique ($R_1 = \overline{S_1C} < 0$ et $R_2 = \overline{S_2C} < 0$) ;

— ϕ_1 et ϕ_2 leurs diamètres.

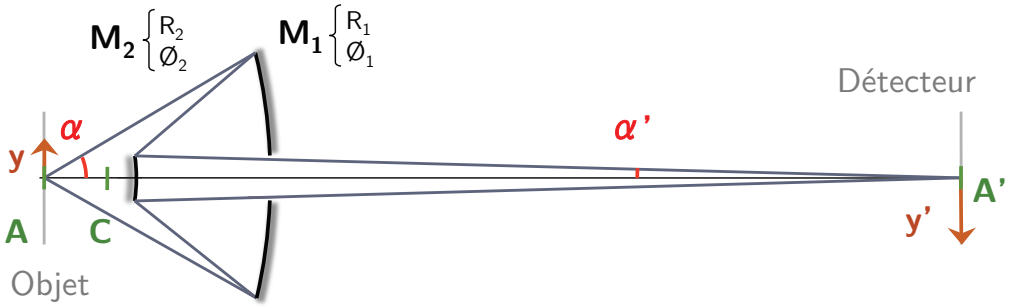


FIGURE 2.4 – Schéma d'un objectif de Schwarzschild et des notations utilisées.

En première approximation (pour les calculs paraxiaux), l'objectif de Schwarzschild est équivalent à une lentille mince placée en C et de focale f'. En effet, en notant A_1 l'image intermédiaire de A par

M_1 :

$$\begin{cases} \frac{1}{\overline{CA}} + \frac{1}{\overline{CA_1}} = \frac{2}{\overline{CS_1}} \\ \frac{1}{\overline{CA_1}} + \frac{1}{\overline{CA'}} = \frac{2}{\overline{CS_2}} \end{cases} \quad \Rightarrow \quad \frac{1}{\overline{CA'}} - \frac{1}{\overline{CA}} = \frac{2}{\overline{CS_2}} - \frac{2}{\overline{CS_1}} = \frac{2 \times (R_2 - R_1)}{R_1 \times R_2} = \frac{1}{f'}$$

avec

$$f' = \frac{R_1 \times R_2}{2 \times (R_2 - R_1)}. \tag{2.7}$$

Pour une conjugaison infini $\rightarrow$ foyer, l'aberration sphérique du 3e ordre peut être annulée en choisissant les rayons de courbure des miroirs tels que :

$$u = \frac{R_2}{R_1} = \frac{3 - \sqrt{5}}{2}. \tag{2.8}$$

Dans le cas présent, le grandissement du Schwarzschild est très élevé ($\times 2700$) ; on peut donc considérer que ce rapport permet de bien s'approcher du cas sans aberration sphérique. Une optimisation sera ensuite réalisée pour affiner le rapport des deux rayons de courbure de sorte à ne plus avoir d'aberration sphérique dans la conjugaison étudiée.

Les relations (2.7) et (2.8) donnent :

$$\begin{cases} R_2 = -2 \times (1 - u) \times f' \\ R_1 = \frac{R_2}{u} \end{cases} \tag{2.9}$$

Le grandissement du Schwarzschild correspond à $g_{Schw} = \frac{\overline{CA'}}{\overline{CA}}$. On a donc aussi :

$$f' = \frac{g_{Schw}}{1 - g_{Schw}} \times \overline{CA} \tag{2.10}$$

Avec toutes les relations précédentes, on voit qu'il suffit de choisir la distance $\overline{CA}$ pour fixer tous les autres paramètres (distances, rayons de courbure, etc.). Le choix de la distance objet $\overline{CA}$ va notamment conditionner l'encombrement du Schwarzschild $(1 + |g_{Schw}|) \times |\overline{CA}|$.

On peut par ailleurs donner une estimation du diamètre des deux miroirs :

$$\begin{cases} \phi_1 \approx 2 \times \tan \alpha \times \left(|\overline{CA}| - R_1 \right) \\ \phi_2 \approx 2 \times \tan \alpha' \times \left(|\overline{CA'}| + R_2 \right) \end{cases} \tag{2.11}$$

Enfin, on peut calculer le taux d'obturation du Schwarzschild τ_{Schw}. Il est défini comme étant le rapport des surfaces du miroir secondaire et primaire rapportés dans le plan de la pupille. Ainsi :

$$\tau_{Schw} = \left[\frac{\phi_2 \times \frac{\overline{AC} - R_1}{\overline{AC} - R_2}}{\phi_1} \right]^2 = \left[\frac{\phi_2 \times \left(\overline{AC} - R_1 \right)}{\phi_1 \times \left(\overline{AC} - R_2 \right)} \right]^2 \tag{2.12}$$

Pour résumer, les calculs précédents ont montré qu'il suffit de choisir la distance de travail $\overline{AC}$ pour en déduire tous les autres paramètres du Schwarzschild (à ajuster légèrement pour les adapter à la conjugaison), sachant que le grandissement et l'ouverture numérique objet sont fixés par le cahier des charges ($|g_{Schw}| = 2700$ et $ON_{obj} = 0{,}157$). On regroupe dans la Table 2.3 les valeurs des principaux paramètres en fonction de la distance de travail.

La Table 2.3 met en évidence des limitations sérieuses à un design composé d'un Schwarzschild uniquement. En effet, cette solution nécessite un encombrement très élevé, de plusieurs dizaines de

TABLE 2.3 – Valeurs calculées des paramètres principaux du Schwarzschild. Les valeurs posant problème sont indiquées en caractères gras et surlignées en gris.

Paramètre	Miroir primaire (mm)		Miroir secondaire (mm)		Focale (mm)	Encombrement (m)
	R_1	ϕ_1	R_2	ϕ_2		
AC = 10 mm	-32,349	**13,464**	-12.356	**3,139**	9,996	**27**
AC = 20 mm	-64,697	26,929	-24,712	**6,277**	19,993	**54**
AC = 60 mm	-194,092	80,787	-74,137	18,831	59,978	**162**

mètres, en raison du fort grandissement, ce qui provoquerait d'énormes difficultés pour le réglage ou la stabilité mécanique notamment. Cet encombrement pourrait être quelque peu réduit si l'on choisit une distance de travail plus courte ; c'est cependant au détriment de la faisabilité des miroirs, particulièrement du secondaire, dont le diamètre devient bien trop petit pour être fabriqué avec la qualité de surface requise. Ce serait d'ailleurs toujours le cas en utilisant un grandissement plus faible : ainsi, si la résolution visée n'était plus que de 100 nm, le grandissement serait divisé par un facteur 10, ce qui donnerait malgré tout un encombrement de plus de 16 m avec une distance $\overline{AC}$ de 60 mm. Cette solution ne semble donc pas réalisable en pratique.

2.2.2 Solution à trois miroirs

Nous allons à présent étudier une autre famille de schéma optique, pour laquelle la puissance de l'objectif est répartie entre un objectif de Schwarzschild et un troisième miroir sphérique. Ceci permet donc d'utiliser un grandissement plus faible pour le Schwarzschild ce qui réduit l'encombrement du Schwarzschild. Par ailleurs, l'ajout du troisième miroir permet de replier le système, ce qui permet également de limiter l'encombrement du système complet.

2.2.2.1 Mise en place géométrique

Dans un premier temps, nous allons mentionner rapidement les calculs préliminaires nécessaires à la mise en place du système. La Figure 2.5 représente un schéma du système à trois miroirs et quelques notations que nous utiliserons par la suite.

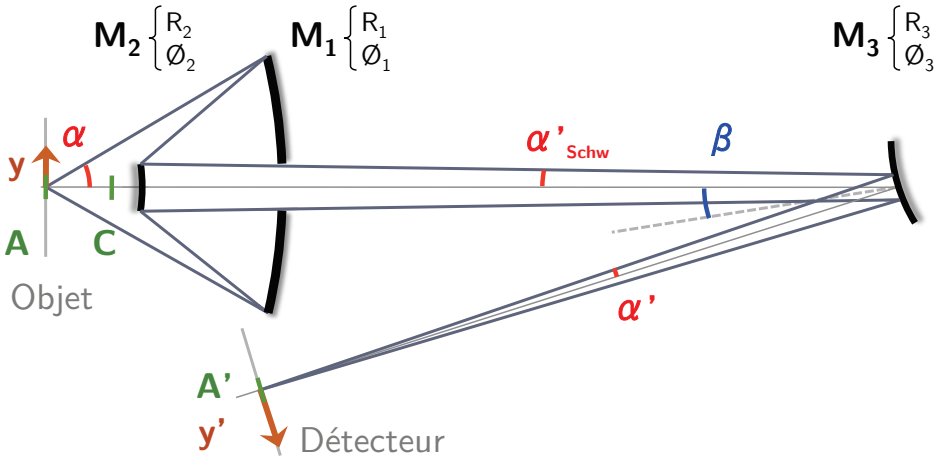


FIGURE 2.5 – Schéma du système à trois miroirs et les notations utilisées.

Pour la partie « Schwarzschild », les calculs seront exactement les mêmes que précédemment. Les notations utilisées seront cependant différentes du paragraphe 2.2.1 (afin notamment de garder le fait que A' est l'image de A par l'objectif complet) :

— la conjugaison est la suivante : $A \xrightarrow{M_1} A_1 \xrightarrow{M_2} A_2 \xrightarrow{M_3} A'$ (où « $\xrightarrow{M_i}$ » signifie « a pour image par le miroir M_i ») ;

— les grandissements du Schwarzschild, du 3e miroir et du système complet seront notés respectivement g_{Schw}, g_3 et g_{tot}. On a donc : $g_{tot} = g_{Schw} \times g_3$;

— les angles d'ouverture objet, après le Schwarzschild et image seront notés respectivement α, α'_{Schw} et α'. Ces angles vérifient : $\alpha' = \frac{\alpha'_{Schw}}{g_3} = \frac{\alpha}{g_{tot}}$;

— de manière analogue à ce qui précède, on notera R_i, ϕ_i et S_i respectivement le rayon de courbure, le diamètre et le sommet du miroir M_i ;

— le centre de courbure commun aux miroirs primaire et secondaire est noté C ; celui du miroir M_3 est noté C_3 ;

— y est le champ objet et y' le champ image ($y' = g_{tot} \times y$) ;

— on notera β l'angle d'inclinaison du miroir M_3 par rapport à l'axe optique.

Pour les calculs préliminaires, on ne tient pas compte de l'inclinaison du miroir M_3. La position de l'image A' est telle que :

$$\frac{1}{\overline{C_3A'}} + \frac{1}{\overline{C_3A_2}} = \frac{2}{\overline{C_3S_3}} \tag{2.13}$$

Ainsi :

$$\overline{C_3A'} = -\frac{R_3}{2}(1 + g_3) \tag{2.14}$$

On considère que le grandissement total de l'objectif g_{tot} peut être positif ou négatif. Le grandissement du Schwarzschild sera négatif ; on peut accepter que le grandissement du 3e miroir soit positif ou négatif. Pour pouvoir réduire le grandissement du Schwarzschild, il faut que $|g_3| > 1$. On veut de plus que l'image A' soit réelle (l'image doit se former sur un détecteur), ce qui impose que $\overline{S_3A'} < 0$. Deux cas sont possibles :

— si le miroir M_3 est **convexe** ($R_3 = \overline{S_3C_3} > 0$) : l'image intermédiaire A_2 doit être virtuelle et située entre S_3 et le foyer F_3 de M_3. Dans ce cas, $g_3 > 0$;

— si le miroir M_3 est **concave** ($R_3 = \overline{S_3C_3} < 0$) : l'image intermédiaire A_2 doit être réelle et située entre F_3 et C_3. Dans ce cas, $g_3 < 0$.

Afin de simplifier la mécanique de tenue du dispositif, on a choisi de placer le détecteur à peu près au niveau du miroir primaire. On peut donc calculer le rayon de courbure de M_3 de sorte à avoir $\left|\overline{S_3A'}\right| \approx \left|\overline{S_1S_3}\right|$.

D'une part :

$$\begin{aligned} \overline{S_3A'} &= \overline{S_3C_3} + \overline{C_3A'} \\ &= R_3 - (g_3 + 1) \times \frac{R_3}{2} = -\frac{R_3}{2} \times (g_3 - 1) \end{aligned} \tag{2.15}$$

D'autre part :

$$\begin{aligned} \overline{S_1S_3} &= \overline{S_1C} + \overline{CA_2} + \overline{A_2C_3} + \overline{C_3S_3} \\ &= R_1 + g_{Schw} \times \overline{CA} + \frac{g_3 + 1}{g_3} \times \frac{R_3}{2} - R_3 \\ &= R_1 + g_{Schw} \times \overline{CA} + \frac{1 - g_3}{g_3} \times \frac{R_3}{2} \end{aligned} \tag{2.16}$$

donc :

$$|\overline{S_3A'}| = |S_1S_3| \quad \Rightarrow \quad R_3 = -\frac{2g_3}{1-g_3^2} \times \left(R_1 + g_{Schw} \times \overline{CA}\right) \tag{2.17}$$

Le choix du grandissement g_3 du miroir M_3 ainsi que la distance objet–pupille $\overline{AC}$ permet donc de définir un point de départ respectant a priori les conditions que l'on a fixées.

En pratique, le miroir M_3 doit être incliné d'un angle β pour pouvoir placer correctement le détecteur. Pour cela, on choisit de laisser une marge, notée m (voir Figure 2.6), entre le bord du miroir primaire et la caméra (de largeur notée l). L'angle d'inclinaison du 3e miroir vérifie :

$$\tan 2\beta = \frac{\phi_1/2 + l/2 + m}{\overline{S_1S_3}} \tag{2.18}$$

Pour les calculs, on a considéré une caméra de largeur 130 mm (la caméra iKon-L SY de chez Andor a une largeur de 128 mm) et une marge de 20 mm entre le bord du miroir primaire et le bord de la caméra.

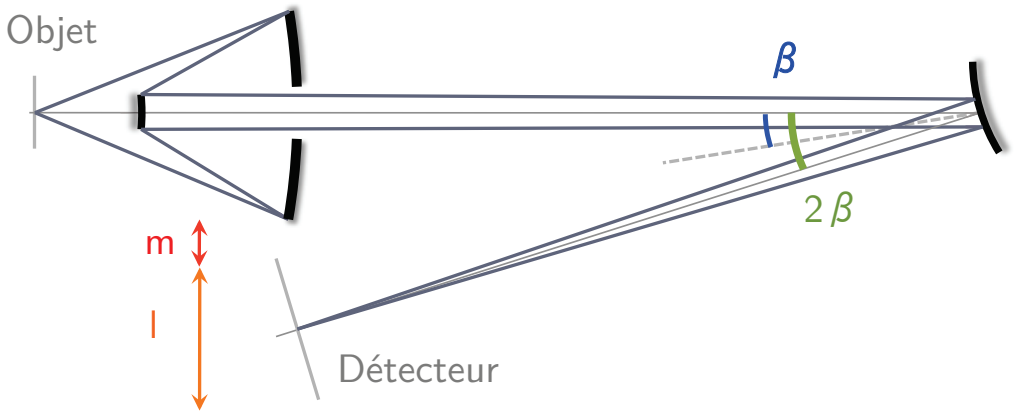


FIGURE 2.6 – Schéma du dispositif à trois miroirs et les notations utilisées pour l'inclinaison du troisième miroir.

Les résultats de ces calculs préliminaires sont indiqués en Table 2.4 pour quelques systèmes à trois miroirs étudiés. Ici, l'encombrement désigne la place maximale occupée par le système optique, soit la distance $\overline{AS_3}$. Les résultats de la Table 2.4 montrent que la solution à trois miroirs semble géométriquement acceptable : suivant le choix du grandissement du Schwarzschild et de la distance $\overline{AC}$, il est possible d'obtenir à la fois des diamètres de miroirs et un encombrement tout à fait raisonnables (diamètres supérieurs à 10 mm pour un encombrement de quelques mètres).

2.2.2.2 Optimisation des paramètres

Le schéma optique à trois miroirs est composé d'un Schwarzschild (système optique aplanétique) et un troisième miroir, qui peut ajouter des aberrations potentiellement gênantes. J'ai donc tenté, par simulation et optimisation sur OSLO, de déterminer s'il était possible de corriger ces aberrations en respectant le cahier des charges.

Différentes configurations ont été testées, incluant différentes valeurs de grandissement du miroir M_3 et différentes valeurs de la distance $\overline{AC}$. Compte tenu du fort grandissement nécessaire pour le système complet, le grandissement du miroir a été choisi de sorte à équilibrer à peu près la puissance entre le Schwarzschild et le 3e miroir. Ainsi, le grandissement du Schwarzschild était typiquement entre

TABLE 2.4 – Paramètres de systèmes à trois miroirs en fonction de la distance $\overline{AC}$ et du grandissement g_3 du miroir M_3. Les rayons de courbure et les diamètres sont indiqués en millimètres. L'angle β d'inclinaison du miroir M_3 est donné en degrés.

$\overline{AC}$	g_{Schw}	g_3	Miroir primaire		Miroir secondaire		Miroir tertiaire			Encombre-
			R_1	ϕ_1^{min}	R_2	ϕ_2	R_3	ϕ_3^{min}	β	-ment (m)
30 mm	−50	54	−95,18	39,78	−36,35	9,19	52,05	0,50	4,36	1,50
		−54					−52,05	0,52	4,20	1,56
	−100	27	−96,12	40,08	−36,71	9,30	215,40	0,99	2,15	2,93
		−27					−215,40	1,06	2,00	3,14
	−200	13,5	−96,60	40,24	-36.90	9.36	879.40	1.91	1.10	5.62
		−13,5					−879,40	2,21	0,94	6,50
40 mm	−50	54	−126,90	53,05	−48,47	12,25	69,40	0,50	3,47	2,01
		−54					−69,40	0,52	3,35	2,08
	−100	27	−128,16	53,45	−48,95	12,40	287,20	0,99	1,71	3,90
		−27					−287,20	1,06	1,59	4,19
	−200	13,5	−128,80	53,65	−49,20	12,48	1 172,54	1,91	0,87	7,50
		−13,5					−1 172,54	2,21	0,75	8,67
50 mm	−50	54	−158,63	66,31	−60,59	15,31	86,75	0,50	2,94	2,51
		−54					−86,75	0,52	2,84	2,59
	−100	27	−160,20	66,81	−61,19	15,50	359,00	0,99	1,45	4,88
		−27					−359,00	1,06	1,35	5,24
60 mm	−20	135	−184,92	77,84	−70,63	17,73	15,04	0,20	7,05	1,25
		−135					−15,04	0,21	6,94	1,27
	−50	54	−190,36	79,57	−72,71	18,38	104,10	0,50	2,59	3,01
		−54					−104,10	0,52	2,50	3,11
	−100	27	−192,24	80,17	−73,43	18,60	430,80	0,99	1,28	5,85
		−27					−430,80	1,06	1,19	6,28

-20 et -100. On a vu auparavant que suivant la distance $\overline{AC}$ choisie, le diamètre du miroir secondaire pouvait être beaucoup trop petit pour pouvoir être fabriqué. L'équation (2.11) indique que le diamètre de ce miroir dépend essentiellement de cette distance $\overline{AC}$ pour des fortes valeurs du grandissement g_{Schw} :

$$\begin{aligned} \phi_2 &\approx 2 \times \tan \alpha'_{Schw} \times \left(\overline{AC} \times |g_{Schw}| + R_2 \right) \\ &\approx 2 \times \tan \alpha'_{Schw} \times \overline{AC} \times |g_{Schw}| \\ &\approx 2 \times \sin \alpha \times \overline{AC} \end{aligned} \tag{2.19}$$

Pour des distances $\overline{AC} < 30$ mm, le diamètre du miroir secondaire du Schwarzschild sera trop petit pour être fabriqué avec une qualité de surface suffisante. On indique en Table 2.5 un aperçu des différents systèmes à trois miroirs pour lesquels une optimisation avec le logiciel OSLO a été réalisée.

Les simulations avec OSLO montrent, comme prévu, que le troisième miroir apporte de l'aberration sphérique. Afin de diminuer cette aberration sphérique, il est possible d'optimiser le rapport u des rayons de courbure du Schwarzschild, de manière à introduire une aberration sphérique opposée.

En pratique, malheureusement, cela ne marche pas très bien si l'on veut en plus conserver les autres

TABLE 2.5 – Systèmes testés en fonction des valeurs de g_{Schw} et $\overline{AC}$

$\lvert g_{Schw}\rvert$	$\times 20$	$\times 50$	$\times 100$	$\times 200$
$\overline{AC} = 30$ mm	–	✓	✓	✓
$\overline{AC} = 40$ mm	–	✓	✓	✓
$\overline{AC} = 50$ mm	–	✓	✓	–
$\overline{AC} = 60$ mm	✓	✓	✓	–

contraintes que l'on s'est fixées (détecteur proche du miroir primaire M_1), particulièrement pour les systèmes dont le grandissement du miroir M_3 est élevé. J'ai donc choisi d'asphériser le miroir M_1 ; cela permet dans tous les cas (quelque soit le grandissement g_3 ou la distance $\overline{AC}$) d'annuler l'aberration sphérique due au troisième miroir.

Dans la majorité des cas étudiés, l'angle d'inclinaison du troisième miroir n'avait pas ou peu d'influence sur la qualité optique du système complet. Néanmoins, lorsque le grandissement du Schwarzschild est relativement faible, l'angle d'inclinaison β du troisième miroir n'est pas négligeable car la distance $\overline{S_1S_3}$ sera relativement courte. La Table 2.4 montre notamment que l'on doit incliner ce miroir de l'ordre de 7° lorsque $\lvert g_{Schw}\rvert = 20$. Un angle d'inclinaison non négligeable du miroir sera équivalent à travailler avec des angles de champ non négligeables pour ce miroir. De l'astigmatisme peut alors apparaître et dégrader notablement les performances du système. C'est le cas pour un grandissement $\lvert g_{Schw}\rvert = 20$: le calcul de l'énergie encerclée à 84% (montré en Figure 2.7) indique que le rayon de la tache image est de 70 μm approximativement, soit environ 26 nm côté objet. La résolution de 10 nm n'est donc plus assurée dans ce cas.

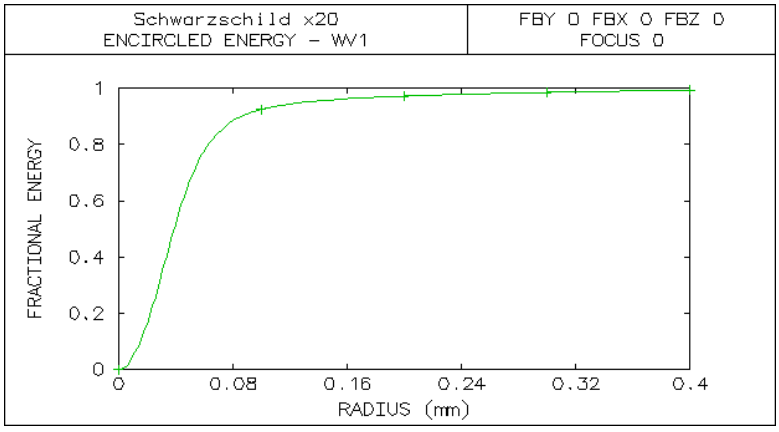


FIGURE 2.7 – Fraction de l'énergie totale de la tache image contenue dans un cercle de rayon variable (en abscisse) pour un point au centre du champ imagé par un système à trois miroirs dont le grandissement du Schwarzschild est de -20 et la distance $\overline{AC}$ de 60 mm.

Cette famille de systèmes optique semble donc adaptée, sous réserve que l'on ne choisisse pas un grandissement trop faible pour la partie « Schwarzschild ».

2.2.2.3 Bilan radiométrique

Un bilan radiométrique [2] a été réalisé. Pour cela, nous avons considéré que le microscope sera installé sur une ligne de lumière synchrotron, dont les caractéristiques sont celles de la ligne SEXTANTS du synchrotron SOLEIL, qui sera probablement la ligne de lumière utilisée pour la métrologie du microscope. Cette ligne de lumière couvre une gamme spectrale allant de 50 eV à 1700 eV. La description technique de cette ligne de lumière [3] indique que le flux en sortie de la ligne est de 1×10^{14} photons/s/0,1% bw à 100 eV et de 2×10^{13} photons/s/0,1% bw à 1000 eV [4]. Pour nos calculs, nous allons considérer que le flux F en entrée du microscope à 395 eV sera de l'ordre de $F = 5 \times 10^{13}$ photons/s/0,1% bw et les dimensions du faisceau de $S_{source} = 50 \times 50$ μm^2, qui est une valeur typique pour le faisceau de la ligne SEXTANTS. Un schéma du dispositif ainsi que les notations des différentes grandeurs d'intérêt sont représentés en Figure 2.8.

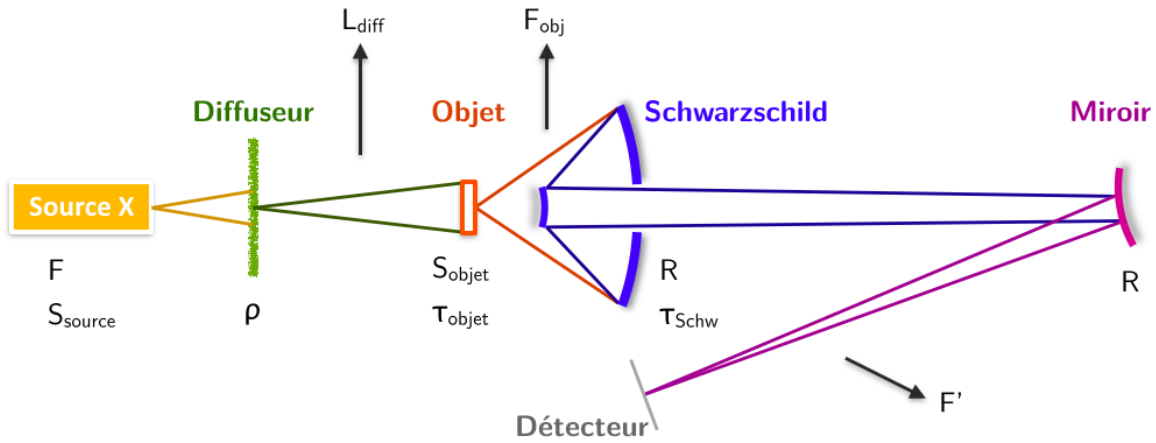


FIGURE 2.8 – Schéma du dispositif à trois miroirs et des notations utilisées pour le bilan radiométrique.

Pour réaliser l'éclairage incohérent, on a besoin d'un dispositif permettant le contrôle de la cohérence spatiale. Nous allons considérer le cas le plus simple incluant un diffuseur parfait lambertien, d'albédo $\rho = 1$. La luminance en sortie du diffuseur L_{diff} vérifie :

$$L_{diff} = \rho \frac{F}{\pi S_{source}} \tag{2.20}$$

La luminance après l'échantillon L_{obj} est telle que $L_{obj} = \tau_{objet} \times L_{diff}$ où τ_{objet} est la transmission de l'échantillon étudié. Nous allons considérer ici que les images vont être réalisées avec un échantillon test dont la transmission est $\tau_{objet} = 1$ (pour les parties non absorbantes). Le flux incident sur le Schwarzschild F_{obj} vérifie :

$$\begin{aligned} F_{obj} &= L_{obj} \times \pi S_{objet} ON_{obj}^2 \\ &= \tau_{objet} \times \rho \frac{S_{objet}}{S_{source}} \sin^2 \alpha \times F \end{aligned} \tag{2.21}$$

où $\sin \alpha$ est l'ouverture numérique objet de l'objectif de microscope ($\sin \alpha = 0,157$) et S_{objet} est la surface de l'échantillon correspondant au champ objet du microscope ($S_{objet} = (10,24 \times 10,24)$ μm^2 ; voir l'équation (2.5)).

2. Calcul de l'efficacité en terme de nombre de photons
3. Voir : `www.synchrotron-soleil.fr/Recherche/LignesLumiere/SEXTANTS/description#Technical`
4. 0,1% bw signifie « 0,1% bandwidth », c'est-à-dire que le flux est calculé sur une bande de largeur égale à 0,1% de l'énergie de photons centrale.

Enfin, le flux sur le détecteur F' est :

$$\begin{aligned} F' &= R^3 \times \tau_{Schw} \times F_{obj} \\ &= R^3 \, \tau_{Schw} \, \tau_{objet} \times \rho \frac{S_{objet}}{S_{source}} \sin^2 \alpha \times F \end{aligned} \tag{2.22}$$

où R est la réflectivité d'un miroir et τ_{Schw} le taux d'obturation du Schwarzschild.

On peut enfin calculer le flux par pixel F'_{pix} reçu sur le détecteur :

$$F'_{pix} = \frac{F'}{(2048)^2} \tag{2.23}$$

On peut calculer la valeur de τ_{Schw} pour les systèmes étudiés précédemment (voir Table 2.4) : il apparaît que quelque soit le design étudié, le taux d'obturation est quasiment constant et vaut τ_{Schw} = 0,19.

En remplaçant les différentes grandeurs par leur valeur numérique, on obtient :

$$\begin{aligned} F'_{pix} &= \frac{0,19 \times 1 \times 1 \times 10,24^2 \times 0,157^2 \times 5 \times 10^{13}}{50^2 \times 2048^2} \times R^3 \\ &\approx 2342 \times R^3 \text{ photons/s/pixel} \end{aligned} \tag{2.24}$$

Le flux en sortie dépend très fortement de la réflectivité que l'on peut espérer atteindre avec les revêtements multicouches. Or, on a vu au Chapitre 1 (voir notamment la section 1.2.3.2) que la réflectivité de revêtements Cr/Sc atteint jusqu'à 15% environ. Des réflectivités plus élevées ont été atteintes en modifiant la composition des couches, jusqu'à 32% [Gullikson2008]. On montre en Table 2.6 le flux par pixel calculé pour différentes valeurs de la réflectivité des miroirs. On suppose que tous les miroirs du système sont parfaitement accordés et ont la même réflectivité pic.

TABLE 2.6 – Flux total sur le détecteur (en photons/s/0,1%bw), flux sur le détecteur par pixel (en photons/s/0,1%bw/pixel) et durée de remplissage du puits du détecteur en fonction de la réflectivité par miroir.

Réflectivité par miroir	10%	15%	20%	25%	30%
Flux total	9 821 613	33 147 944	78 572 903	153 462 702	265 183 549
Flux par pixel	2	8	19	37	63
Remplissage du puits (s)	56940	16871	7117	3644	2109
Remplissage du puits (min)	949	281	119	61	35

Ces résultats montrent que lorsque le flux par pixel est faible, particulièrement pour les réflectivités en dessous de 15%. Afin de donner un ordre de grandeur du temps de pause nécessaire, la durée de remplissage du puits de la CCD utilisée a été calculée ; pour cela, la valeurs de profondeur du puits et de rendement quantique des détecteurs Andor présentés en Table 2.1 ont été utilisées (profondeur de puits de 100 ke^- et rendement quantique de 75%). Même pour des valeurs élevées de la réflectivité des multicouches, la durée de remplissage du puits est très longue : 35 minutes minimum.

En conclusion, ce système à trois miroirs permet de réduire fortement l'encombrement de l'objectif de microscope, en offrant une bonne qualité optique, sous réserve que le grandissement de la partie « Schwarzschild » ne soit pas trop faible. Cependant, sa limite est son bilan radiométrique : ce type de système offre une efficacité limitée en terme de nombre de photons et nécessitera de longs temps de pause pour faire une image, ce qui peut s'avérer rédhibitoire.

2.2.3 Solution avec conversion X → visible

Une troisième solution a été envisagée : un scintillateur peut être utilisé pour convertir les photons X en photons visibles. Ceci permettra de séparer la puissance en deux parties :

— une partie « X », composée d'un objectif de Schwarzschild à grandissement modéré ;

— une partie « visible » à la suite du scintillateur, composée d'un objectif de microscope commercial, ou d'un autre Schwarzschild par exemple.

Le scintillateur utilisé sera un cristal de YAG dopé Ce (YAG:Ce).

Lors de la conversion, chaque photon X absorbé donne lieu à l'émission de plusieurs photons visibles dans tout l'espace et dans un spectre relativement large (voir Figure 2.9) dont le maximum correspond à une longueur d'onde de l'ordre de 550 nm. Le nombre de photons visibles émis dépend de l'énergie des photons incidents et de l'efficacité de conversion du matériau : elle est par exemple de 35×10^3 photons/MeV pour les scintillateurs YAG:Ce de la société Crytur. Dans notre cas, l'énergie des photons X sera de 395 eV ; il y aura donc environ 14 photons visibles émis par photon X à 395 eV absorbé. Par ailleurs, la Figure 2.9 montre que les spectres d'absorption et d'émission du YAG:Ce sont tout à fait distincts. Il ne risque donc pas d'y avoir de pertes supplémentaires (provenant par exemple de l'absorption dans le cristal des photons visible émis). L'indice de réfraction du scintillateur à la longueur d'onde centrale d'émission est :

$$n_{YAG}(\lambda = 550 \text{ nm}) = 1{,}82 \tag{2.25}$$

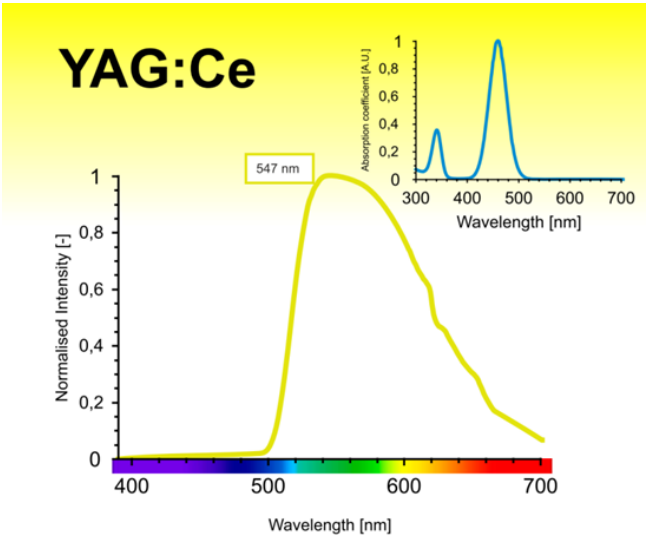


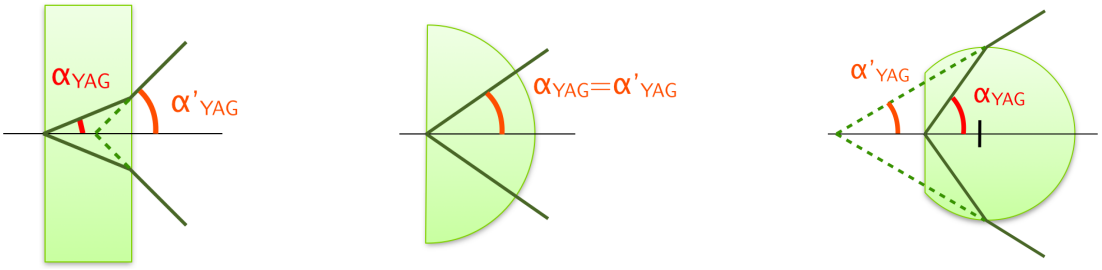
FIGURE 2.9 – Spectre d'émission et d'absorption (en haut à droite) du YAG:Ce. Source : `crytur.cz`

Pour la forme du scintillateur, plusieurs solutions sont possibles (voir en Figure 2.10) :

— en forme de **lame** : il s'agit du cas le plus simple à fabriquer et positionner. Néanmoins, cela introduira des aberrations (aberration sphérique, chromatisme, etc.) que l'on devra corriger avec le système visible qui suit ;

— en forme de **demi-boule** : le scintillateur sera utilisé en conjugaison au centre de courbure, ce qui est une conjugaison aplanétique (dénuée d'aberration sphérique et de coma) et apportera peu de chromatisme (les rayons sont perpendiculaires à la surface de la boule pour un point sur l'axe et quasiment perpendiculaires dans le champ car le champ reste faible) ;

— en forme de portion de boule, utilisée aux **points d'Young-Weierstrass** : cette conjugaison est aplanétique, mais non dénuée de chromatisme. Cette conjugaison permet de réduire l'angle d'ouverture en sortie de la boule. À angle d'ouverture identique du système optique visible, on pourra collecter plus de photons avec la boule utilisée aux points d'Young Weierstrass que pour la demi-boule utilisée à son centre de courbure (voir les Figure 2.10(b) et (c)).



(a) (b) (c)

FIGURE 2.10 – Choix possibles pour la forme du scintillateur : (a) lame à faces parallèles (b) demi-boule (c) portion de boule utilisée à ses points d'Young-Weierstrass.

En raison des avantages et inconvénients listés précédemment, le scintillateur en forme de demi-boule s'avère être le meilleur compromis entre la qualité optique (solution qui apporte le moins d'aberrations géométriques et chromatiques) et la maximisation de la collection des photons.

2.2.3.1 Mise en place géométrique et adaptation du cahier des charges

Un schéma du dispositif et des notations utilisées est représenté en Figure 2.11.

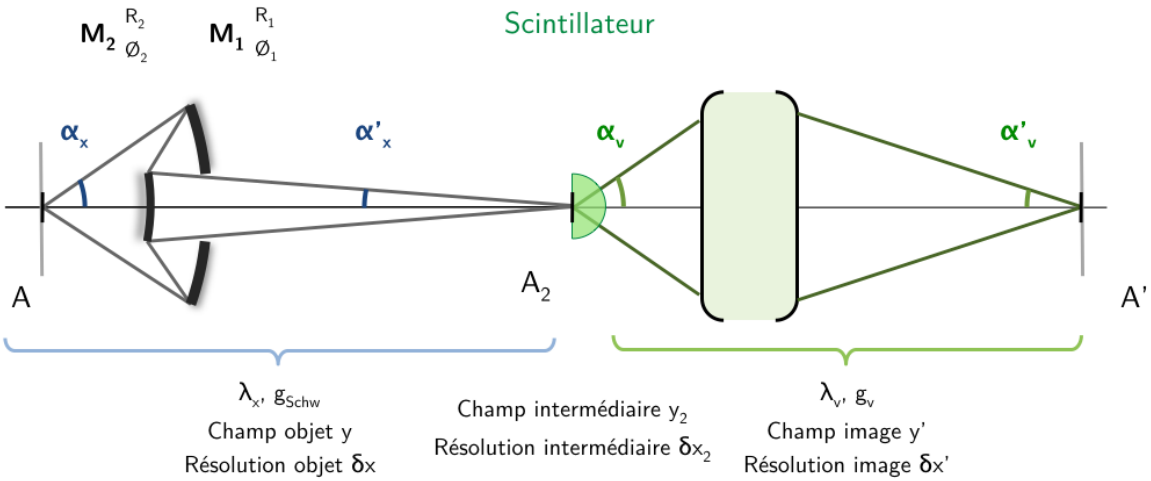


FIGURE 2.11 – Schéma du système avec conversion des rayons X en lumière visible.

On considère un objectif de Schwarzschild de grandissement g_{Schw} suivi d'un scintillateur YAG:Ce en forme de demi-boule puis d'un objectif visible de grandissement g_v. Le scintillateur va contribuer au grandissement ; en effet, si l'on écrit la relation des sinus d'Abbe (en utilisant les notations de la Figure 2.10) et en considérant que n_{YAG} est l'indice de réfraction du scintillateur, y_2 est le champ objet pour le scintillateur et y'_2 son champ image :

$$n_{YAG} \times y_2 \times \sin \alpha_{YAG} = y'_2 \times \sin \alpha'_{YAG} \tag{2.26}$$

et donc le grandissement du au scintillateur g_{YAG} vérifie :

$$g_{YAG} = \frac{y'_2}{y_2} = n_{YAG} = 1{,}82 \tag{2.27}$$

puisque $\alpha_{YAG} = \alpha'_{YAG}$ car il s'agit d'une conjugaison au centre de courbure. Le grandissement g_{tot} du système complet vaut donc :

$$g_{tot} = g_{Schw} \times g_{YAG} \times g_v \tag{2.28}$$

De manière analogue au cas du Schwarzschild simple (toujours dans le cas où l'on considère que l'on est limité par la diffraction), la résolution côté objet δx du système optique sera :

$$\delta x = \frac{\lambda_X}{2 \sin \alpha_X} \tag{2.29}$$

Dans le plan image du Schwarzschild, elle sera donc :

$$\delta x_2 = g_{Schw} \times \delta x = \frac{\lambda_X}{2 \sin \alpha'_X} \tag{2.30}$$

La resolution doit être conservée lors de la conversion des photons par le scintillateur. Pour cela, il faut que :

$$\frac{\lambda_X}{2 \sin \alpha'_X} = g_{Schw} \times \frac{\lambda_X}{2 \sin \alpha_X} = \frac{\lambda_v}{2 n_{YAG} \sin \alpha_v} \tag{2.31}$$

Le choix du grandissement de la partie Schwarzschild va donc imposer une ouverture numérique minimale pour l'objectif visible. Par exemple, avec $g_{Schw} = 200$, on obtient :

$$\sin \alpha_v = \frac{\lambda_v}{\lambda_X} \times \frac{\sin \alpha_X}{g_{Schw} \times n_{YAG}} \approx 0{,}0755 \tag{2.32}$$

La longueur d'atténuation des rayons X dans le cristal de YAG est de l'ordre de 150 nm pour une énergie d'environ 400 eV. La profondeur de champ du système « visible » est quant à elle de l'ordre de quelques μm ($\propto \frac{\lambda_v}{(n_{YAG} \sin \alpha_v)^2} \approx 29\ \mu m$ avec $|g_{Schw}| = 200$). La profondeur de champ étant bien supérieure à la longueur d'atténuation des photons X dans le cristal, on peut donc considérer que les photons convertis viennent tous d'un même plan et l'image ne sera pas détériorée.

Par ailleurs, dans le cas d'une conversion X $\rightarrow$ visible, on trouve des caméras (CCD ou CMOS) avec différentes tailles de pixels, profondeur du puits, rendement quantique et taille de capteur. Plusieurs exemples sont présentés dans la Table 2.7.

En raison de la variété des tailles de pixel et de capteur, on considère pour les calculs que le détecteur sera de taille 2048×2048 avec un pixel de 5 μm. Dans ce cas, le grandissement sera :

$$|g_{tot}| = \frac{2 \times 5\ \mu\text{m}}{10\ \text{nm}} = 1000 \tag{2.33}$$

Dans le cas où le détecteur choisi présente un pixel de taille différente de 5 μm, il sera toujours possible d'adapter le grandissement du système optique visible.

Le champ objet est toujours déterminé par la taille du capteur (en nombre de pixels), donc :

$$y_{tot} = 2048 \times \frac{\delta x}{2} = 10{,}24\ \mu m \quad \text{et} \quad y_{obj} = \frac{\sqrt{2}}{2} y_{tot} \approx 7{,}24\ \mu m \tag{2.34}$$

Pour le reste, les calculs liés au Schwarzschild sont identiques à ceux du paragraphe 2.2.1. Les calculs servant à la mise en place d'un premier système permettent d'annuler l'aberration sphérique. L'optimisation sur le logiciel OSLO est réalisée de manière tout à fait analogue.

TABLE 2.7 – Quelques exemples de caméras fonctionnant dans le visible.

Constructeur	**Hamamatsu**		**Andor**	**Jenoptik**		**Photo-metrics**
Modèle	ORCA II	ORCA-Flash4.0 V2	Neo 5.5	ProgRes CT5	ProgRes C5	CoolSNAP KINO
CCD/CMOS	CCD	CMOS	CMOS	CMOS	CCD	CCD
Capteur (pixels^2)	1024×1024	2048×2048	2560×2160	2592×1944	2580×1944	1940×1460
Taille de pixel	13 μm	6,5 μm	6,5 μm	2,2 μm	3,4 μm	4,54 μm
Rendement quantique à 550 nm	≈92%	≈73%	≈58%	non indiqué		≈73%
Dynamique	16 bits	16 bits	12 et 16 bits	12 bits	12 bits	14 bits
Courant d'obscurité (e$^-$/pix/s)	0,006 5 à -65°C 0,001 2 à -75°C	0,06 à -10°C 0,006 à -30°C	0,015 à -30°C 0,007 à -40°C	non indiqué		0,07 à 20°C
Profondeur du puits	80 ke^-	30 ke^-	30 ke^-	non indiquée		12 ke^-

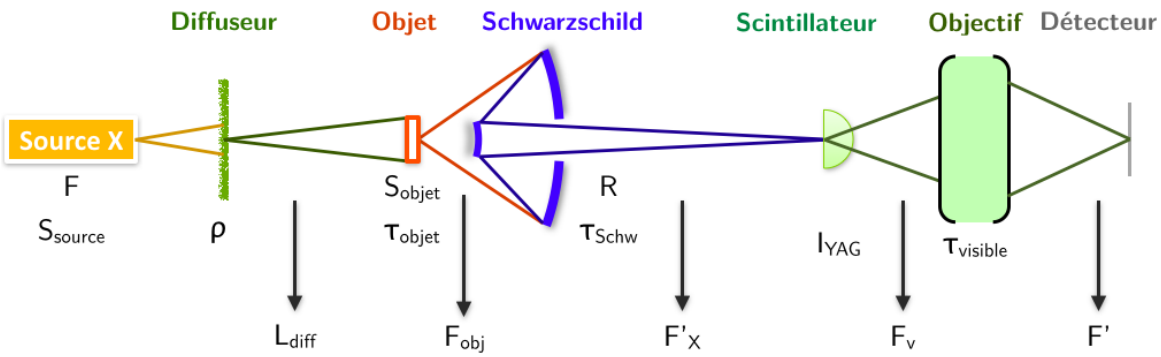


FIGURE 2.12 – Schéma du dispositif à trois miroirs et des notations utilisées pour le bilan radiométrique.

2.2.3.2 Bilan radiométrique

Nous allons maintenant calculer l'efficacité radiométrique de ce type de schéma optique afin de le comparer au schéma à trois miroirs.

De manière analogue au cas du système à trois miroirs, le flux en sortie du Schwarzschild sera :

$$F'_X = R^2 \, \tau_{Schw} \, \tau_{objet} \, \rho \, \frac{S_{objet}}{S_{source}} \, \sin^2 \alpha_X \times F \tag{2.35}$$

Lors de la conversion des photons X en photons visibles, l'émission de photons visible se fait dans tout l'espace. Nous allons donc supposer que l'émission des photons visibles se fait avec une intensité constante I_{YAG} :

$$I_{YAG} = \frac{n \, F'_X}{4\pi} \tag{2.36}$$

où n est le taux de conversion des photons X en photons visibles : pour un photon X incident sur le scintillateur, n photons visibles seront émis dans tous l'espace. La surface de l'image X produite par le Schwarzschild est petite : par exemple, pour un grandissement du Schwarzschild $g_{Schw} = -50$, on a $S'_{objet} = (y_{tot} \times g_{Schw})^2 \approx 0{,}26$ mm^2. Nous allons donc considérer pour les calculs que cette surface peut être vue comme une source ponctuelle. Le flux F_v en sortie du scintillateur vérifie :

$$F_v = (1 - R_{Fresnel}) \times I_{YAG} \times \Omega \tag{2.37}$$

où $\Omega = 2\pi(1 - \cos \alpha_v)$ est l'angle solide correspondant au cône d'ouverture après le scintillateur (l'angle d'ouverture étant α_v). Le terme $(1 - R_{Fresnel})$ tient compte de la réflexion qui a lieu à l'interface entre le scintillateur et l'air : la portion des photons transmis à cette interface est de $(1 - R_{Fresnel})$ où $R_{Fresnel} = \left(\frac{1-n_{YAG}}{1+n_{YAG}}\right)^2 \approx 8\%$. Ainsi :

$$F_v = (1 - R_{Fresnel}) \times \frac{n \, F'_X}{2} \, (1 - \cos \alpha_v) \tag{2.38}$$

L'angle α_v est ici calculé en fonction du grandissement de la partie Schwarzschild, d'après l'équation (2.32).

Plus le grandissement du Schwarzschild est élevé, plus l'ouverture numérique du système optique qui suit le scintillateur est faible, ce qui diminue la quantité de photons que l'on peut collecter. Par ailleurs, on a vu que plus le grandissement du Schwarzschild est fort, plus le système complet nécessitera de la place. Ces deux aspects vont dans le même sens : on souhaite choisir un grandissement pour la partie Schwarzschild pas trop élevé et cela est compatible avec le fait d'avoir un bilan radiométrique le plus efficace possible. La limite est la suivante : $\sin \alpha_v$ ne peut être plus grand que 1 ; cela impose un grandissement minimal du Schwarzschild de :

$$g^{min}_{Schw} = \frac{\lambda_v}{\lambda_X} \times \frac{\sin \alpha_X}{n_{YAG}} = 15{,}1 \tag{2.39}$$

Au final, le flux sur le détecteur est le produit du flux F_v avec la transmission du système optique visible :

$$F' = F_v \times \tau_{visible} \tag{2.40}$$

et le flux par pixel est toujours :

$$F'_{pix} = \frac{F'}{(2048)^2} \tag{2.41}$$

Pour les calculs, on considèrera que la transmission du système visible est proche de 1. Par ailleurs, on a dit que le grandissement du système complet vérifiait :

$$|g_{tot}| = |g_{Schw}| \times n_{YAG} \times |g_v| = 1000 \tag{2.42}$$

Pour que g_{Schw} et g_v soient proches, on peut choisir par exemple $|g_{Schw}| = 20$ et donc $|g_v| = 27,5$, ou $|g_{Schw}| = 30$ et $|g_v| = 18,3$. Les valeurs du flux sur le détecteur sont données dans ces deux cas pour plusieurs valeurs de la réflectivité des miroirs composant le Schwarzschild (voir Table 2.8).

TABLE 2.8 – Bilan radiométrique pour un design avec conversion des photons X en lumière visible pour deux grandissements du Schwarzschild ($g_{Schw} = -20$ et -30). Les durées de remplissage du puits sont indiquées pour deux détecteurs : ORCA II de Hamamatsu et CoolSNAP KINO de Photometrics (voir Table 2.7).

Réflectivité par miroir			**10%**	**15%**	**20%**	**25%**	**30%**
$\mathbf{\lvert g_{Schw}\rvert = 20}$ $\sin\alpha_v = 0,755$	Flux total (photons/s)		$2,18 \cdot 10^8$	$4,91 \cdot 10^8$	$8,72 \cdot 10^8$	$1,36 \cdot 10^9$	$1,96 \cdot 10^9$
	Flux par pixel (photons/s/pix)		52	117	208	325	468
	Durée de remplissage du puits :						
	ORCA II	- en secondes	1 672,13	743,17	418,03	267,54	185,79
		- en minutes	27,87	12,39	6,97	4,46	3,10
	CoolSNAP	- en secondes	316,10	140,49	79,03	50,58	35,12
	KINO	- en minutes	5,27	2,34	1,32	0,84	0,59
$\mathbf{\lvert g_{Schw}\rvert = 30}$ $\sin\alpha_v = 0,504$	Flux total (photons/s)		$8,61 \cdot 10^7$	$1,94 \cdot 10^8$	$3,44 \cdot 10^8$	$5,38 \cdot 10^8$	$7,75 \cdot 10^8$
	Flux par pixel (photons/s/pix)		21	46	82	128	185
	Durée de remplissage du puits :						
	ORCA II	- en secondes	4 236,78	1 883,01	1 059,20	677,88	470,75
		- en minutes	70,61	31,38	17,65	11,30	7,85
	CoolSNAP	- en secondes	800,93	355,97	200,23	128,15	88,99
	KINO	- en minutes	13,35	5,93	3,34	2,14	1,48

De même que pour le schéma à trois miroirs, on a calculé (voir en Table 2.8) le temps de remplissage du puits pour plusieurs détecteurs afin de donner une estimation du temps d'acquisition pour une image. La Table 2.8 montre que ce type de schéma optique permet d'obtenir des temps d'acquisition raisonnables si la réflectivité par miroir n'est pas trop faible (de l'ordre de la minute ou quelques minutes suivant le détecteur utilisé pour les réflectivités de plus de 20%).

Enfin, il est important de déterminer si la conversion des photons X en photons visibles se fait sans générer trop de bruit pour conserver un rapport signal à bruit raisonnable. Dans le cas d'un schéma optique « tout X » (c'est-à-dire sans conversion), on considère uniquement le bruit de photons, dont la variance est égale à la racine carrée du nombre de photons N_X. Dans ce cas, le rapport signal sur bruit RSB_X sera :

$$RSB_X = \frac{N_X}{\sqrt{N_X}} = \sqrt{N_X} \tag{2.43}$$

Dans le cas d'un système optique avec conversion des photons X en photons visibles, le bruit de photons présent dans la partie X peut aussi être converti par le scintillateur, ce qui crée une source additionnelle de bruit. Les sources de bruit sont donc les suivantes :

— bruit de photons variant comme la racine carrée du nombre de photons : $\sigma_v = \sqrt{n \times N_X}$;

— bruit converti par le scintillateur : $\sigma_{conversion} = n \times \sqrt{N_X}$

Le bruit total est la somme quadratique de ces deux sources de bruit. Le rapport signal à bruit dans le cas d'une conversion devient :

$$RSB_v = \frac{N_X \times n}{\sqrt{(\sqrt{nN_X})^2 + (n\sqrt{N_X})^2}} = \sqrt{N_X} \times \sqrt{\frac{n}{1+n}} \tag{2.44}$$

Dans notre cas, le scintillateur (YAG :Ce) dispose d'un rendement de conversion $n = 14$ photons visibles par photon X incident. La modification du rapport signal à bruit vaut donc :

$$\frac{RSB_v}{RSB_X} = \sqrt{\frac{n}{1+n}} \approx 97\% \tag{2.45}$$

Le rapport signal à bruit est donc très peu modifié par la conversion des photons X en photons visibles.

2.2.4 Conclusion

En conclusion, nous avons vu qu'un design basé sur un Schwarzschild uniquement n'est pas réalisable en pratique si l'on souhaite une haute résolution : le fort grandissement nécessaire impose un encombrement bien trop important. Par ailleurs, les résultats précédents ont montré que le schéma optique à conversion des photons X en lumière visible a une meilleure efficacité photométrique que le schéma à trois miroirs. Ceci est illustré en Figure 2.13, où l'on a tracé le flux reçu par le détecteur (par pixel) en fonction de la réflectivité que l'on peut atteindre par miroir.

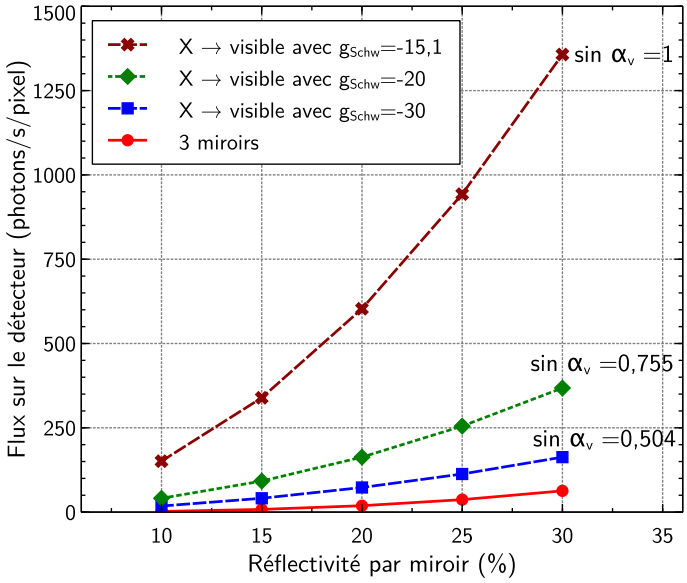


FIGURE 2.13 – Flux reçu par pixel en fonction de la réflectivité par miroir pour plusieurs schémas optiques (schéma à trois miroirs, schémas avec conversion des rayons X en lumière visible pour trois valeurs du grandissement du Schwarzschild : $-15{,}1$, -20 et -30).

Le schéma à trois miroirs semble clairement moins efficace. Par ailleurs, l'optimisation du schéma optique à trois miroirs peut poser problème en raison de l'inclinaison du troisième miroir, qui génère de l'astigmatisme pouvant devenir gênant lorsque le grandissement du Schwarzschild est trop élevé.

Nous avons donc choisi d'utiliser le schéma constitué d'un Schwarzschild à grandissement modéré, suivi d'un scintillateur en forme de demi-boule (utilisée à son centre de courbure) et d'un système optique visible.

2.3 Optimisation et design final du microscope

Maintenant que nous avons choisi la famille de design la plus adaptée, nous allons optimiser plus précisément le design de l'objectif du microscope.

2.3.1 Prise en compte des erreurs de forme

On a vu au Chapitre 1 (section 1.1.1.3) que les surfaces réelles utilisées pour les substrats des miroirs du microscope ne seront pas parfaites en pratique et présenteront des erreurs de forme. Ces écarts par rapport à une sphère parfaite peuvent détériorer les performances de l'objectif de microscope, notamment sa résolution. Avant de définir précisément le design optique du microscope, on a donc cherché à déterminer l'influence des erreurs de forme sur la résolution de l'objectif, et quelle serait la résolution que l'on pouvait espérer atteindre.

Cette étude a été réalisée en utilisant la forme obtenue pour un miroir superpoli à l'atelier d'optique du LCF dans le cadre d'une mission spatiale (Solar Orbiter) pour fonctionner à une longueur d'onde de 17 nm. La forme de ce substrat, mesurée par interférométrie en lumière visible au LCF (voir le Chapitre 4 pour plus de détails sur l'interféromètre), est tracée en Figure 2.14. Ce miroir est l'un des

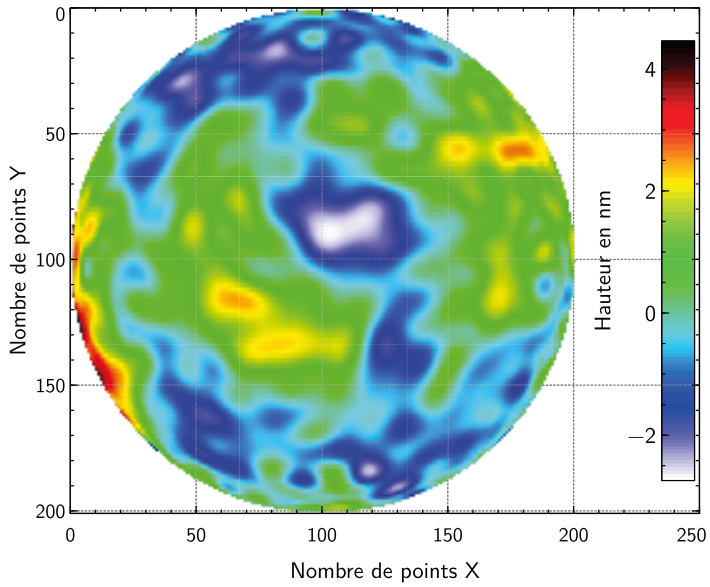


FIGURE 2.14 – Cartographie de la surface mesurée par interférométrie visible d'un substrat de diamètre 54 mm. L'amplitude pic-vallée mesurée est de 7,2 nm et l'amplitude RMS de 1,073 nm.

meilleurs polis par l'atelier d'optique ; il constitue l'état de l'art de l'atelier en terme des performances atteintes pour la rugosité et la forme.

Le but est de générer différentes surfaces de manière aléatoire représentant des défauts de forme « raisonnables », c'est-à-dire semblables à ceux de la surface représentée en Figure 2.14. Pour cela, j'ai utilisé la décomposition de cette surface sur la base des **polynômes de Zernike**.

La base des polynômes de Zernike est une base orthogonale sur le disque unité. Elle s'écrit en utilisant les coordonnées polaires (u, φ), où u est le module normalisé dans le disque $(0 \leq u \leq 1)$ et φ l'angle d'azimut $(0 \leq \varphi \leq 2\pi)$. La décomposition d'un écart normal $\Delta(u, \varphi)$ sur la base des polynômes

de Zernike $Z_n^m(u,\varphi)$ s'écrit :

$$\Delta(u,\varphi) = \sum_{\substack{(n,m)\in\mathbb{N}^2 \\ n-m \text{ pair}\geq 0}}\sum c_{nm}\, Z_n^m(u,\varphi) \tag{2.46}$$

où le polynôme $Z_n^m(u,\varphi)$ s'écrit :

$$Z_n^m(u,\varphi) = \sqrt{\frac{2(n+1)}{1+\delta_m^0}}\, R_n^m(u)\, \cos m\varphi \tag{2.47}$$

et

$$Z_n^{-m}(u,\varphi) = \sqrt{\frac{2(n+1)}{1+\delta_m^0}}\, R_n^m(u)\, \sin m\varphi \tag{2.48}$$

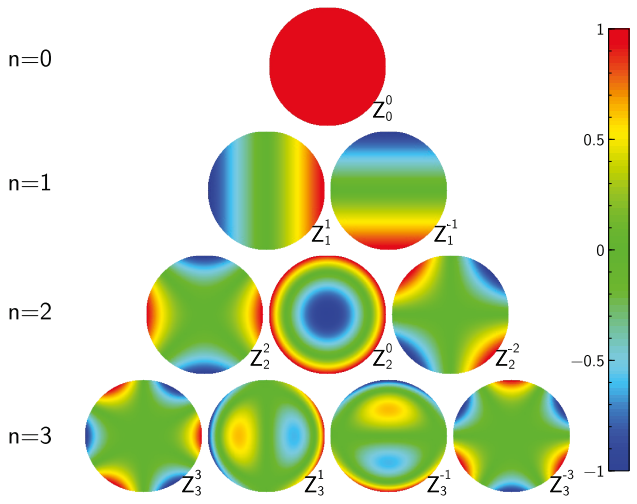
où δ_m^0 est le symbole de Kronecker : $\delta_m^0 = 1$ si m=0 et 0 sinon. $R_n^m(u)$ est la fonction radiale de Zernike ; elle est définie par :

$$R_n^m(u) = \sum_{s=0}^{(n-m)/2} (-1)^s \frac{(n-s)!}{s!\left(\frac{n+m}{2}-s\right)!\left(\frac{n-m}{2}-s\right)!}\, u^{n-2s} \tag{2.49}$$

Le coefficient de normalisation $\sqrt{\frac{2(n+1)}{1+\delta_m^0}}$ n'est pas toujours utilisé. On rencontre également d'autres types de normalisation de cette base de polynômes. Dans la suite de ce document, on utilisera simplement la définition suivante :

$$\begin{cases} Z_n^m(u,\varphi) = R_n^m(u)\, \cos m\varphi \\ Z_n^{-m}(u,\varphi) = R_n^m(u)\, \cos m\varphi \end{cases} \tag{2.50}$$

Cette définition notamment est celle utilisée par le logiciel OSLO. Une représentation des premiers polynômes de Zernike ainsi que leur expression est donnée en Figure 2.15. Pour la suite, les polynômes



Rang	Expression du polynôme Z_n^m
1	$Z_0^0(u,\varphi) = 1$
2	$Z_1^1(u,\varphi) = u\cos\varphi$
3	$Z_1^{-1}(u,\varphi) = u\sin\varphi$
4	$Z_2^2(u,\varphi) = u^2\cos 2\varphi$
5	$Z_2^0(u,\varphi) = 2u^2 - 1$
6	$Z_2^{-2}(u,\varphi) = u^2\sin 2\varphi$
7	$Z_3^3(u,\varphi) = u^3\cos 3\varphi$
8	$Z_3^1(u,\varphi) = (3u^3 - 2u)\cos\varphi$
9	$Z_3^{-1}(u,\varphi) = (3u^3 - 2u)\sin\varphi$
10	$Z_3^{-3}(u,\varphi) = u^3\sin 3\varphi$

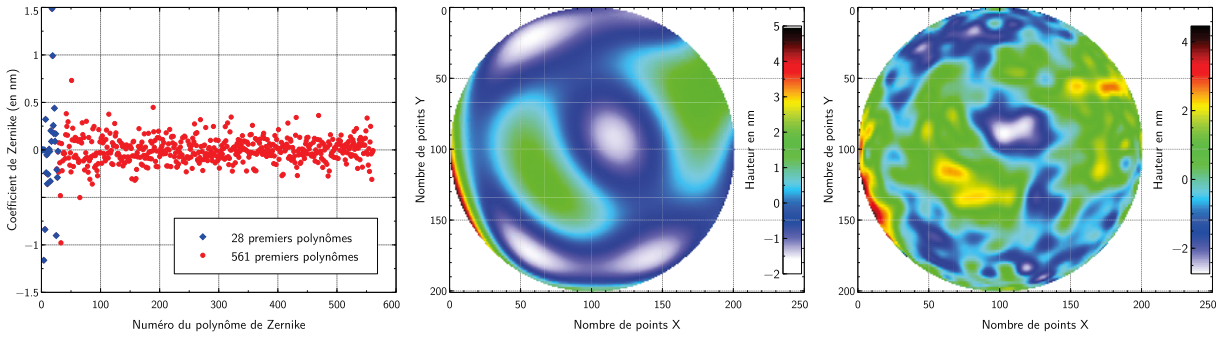
FIGURE 2.15 – Les premiers polynômes de Zernike.

de Zernike seront listés dans l'ordre défini par la Figure 2.15.

La surface mesurée précédemment (voir Figure 2.14), qui est l'une des meilleures surfaces optiques polies à l'atelier d'optique, sera donc décomposée sur la base des polynômes de Zernike. Cette décomposition nous permet de déterminer une répartition typique des erreurs de forme obtenues après polissage à l'atelier d'optique. Elle nous servira de référence pour simuler d'autres erreurs de formes

que l'on peut supposer plausibles. On pourra ensuite injecter ces surfaces simulées dans le logiciel OSLO pour déterminer la résolution que l'on obtiendrait avec de telles surfaces.

La décomposition de cette surface de référence sur les 28 (en bleu) et 561 (en rouge) premiers polynômes de Zernike est donnée en Figure 2.16. Pour la suite, nous avons choisi d'arrêter la décomposition



(a) (b) (c)

FIGURE 2.16 – (a) Coefficients de Zernike de la surface mesurée pour les 28 premiers polynômes de Zernike (en bleu) et les 561 premiers polynômes de Zernike (en rouge) (b) Surface simulée d'après la décomposition sur les 28 premiers polynômes de Zernike (c) Surface simulée d'après la décomposition sur les 561 premiers polynômes de Zernike.

des erreurs de forme jusqu'au 28e polynôme de Zernike : ceci revient à réduire la décomposition aux Z_n^m tels que $n \leq 6$ (les 561 polynômes correspondent aux Z_n^m avec $n \leq 32$). L'ordre 6 est en effet suffisant pour tenir compte des erreurs de forme. Les coefficients d'ordre supérieurs correspondraient à des hautes fréquences, dans lesquelles on retrouverait le bruit de la mesure à l'interféromètre.

Afin de simuler les défauts de forme que l'on aura sur les miroirs de l'objectif de microscope, j'ai donc utilisé des fronts d'onde simulés sous MATLAB correspondant à des polynômes de Zernike jusqu'à $n = 6$, avec une distribution des coefficients de Zernike proche de celle de la surface qui nous sert ici de référence. La Figure 2.16(a) semble indiquer que les coefficients $|c_{nm}|$ varient dans une enveloppe semblable à une exponentielle décroissante. Les coefficients de Zernike pour une surface ont été tirés aléatoirement avec une loi gaussienne dont l'écart-type suit une loi exponentielle : $0{,}635 \times \exp(-0{,}01\,k)$, où k est le numéro du polynôme de Zernike considéré. Par ailleurs, certains coefficients ont été annulés, tels que les coefficients des polynômes Z_0^0, Z_1^1, Z_1^{-1} et Z_2^0. En effet, ces différents termes correspondent respectivement au piston (terme constant sans signification physique), aux tilts et au défaut de mise au point, qui ne sont pas des aberrations intrinsèques à la surface optique mais proviennent des conditions de mesure. L'écart type de la surface est ensuite calculé puis les coefficients sont remis à l'échelle de manière à ce que l'écart type soit de 1 nm (pour rester du même ordre de grandeur que la « vraie » surface que l'on a choisi comme référence).

Douze jeux de coefficients de Zernike ont été générés de cette façon. J'ai ensuite cherché à déterminer la dégradation, due à ces déformations, des performances d'un Schwarzschild de grandissement $\times 20$, et de distance $\overline{AC} = 60$ mm, qui serait utilisé pour la configuration avec conversion des rayons X en lumière visible décrite précédemment. Cet objectif de Schwarzschild a été tout d'abord calculé comme décrit en section 2.2.1. Le rapport des deux rayons de courbure u a ensuite été optimisé de manière à annuler le plus possible l'aberration sphérique d'ordre 3. Enfin, une optimisation sur les rayons de courbure et les distances a été réalisée en utilisant comme fonction d'erreur le rayon RMS de la tache image sur le scintillateur (voir le paragraphe 2.1.2). La définition par surface du Schwarz-

schild ainsi obtenu est donnée en Figure 2.17. Ce Schwarzschild montre un fonctionnement en limite

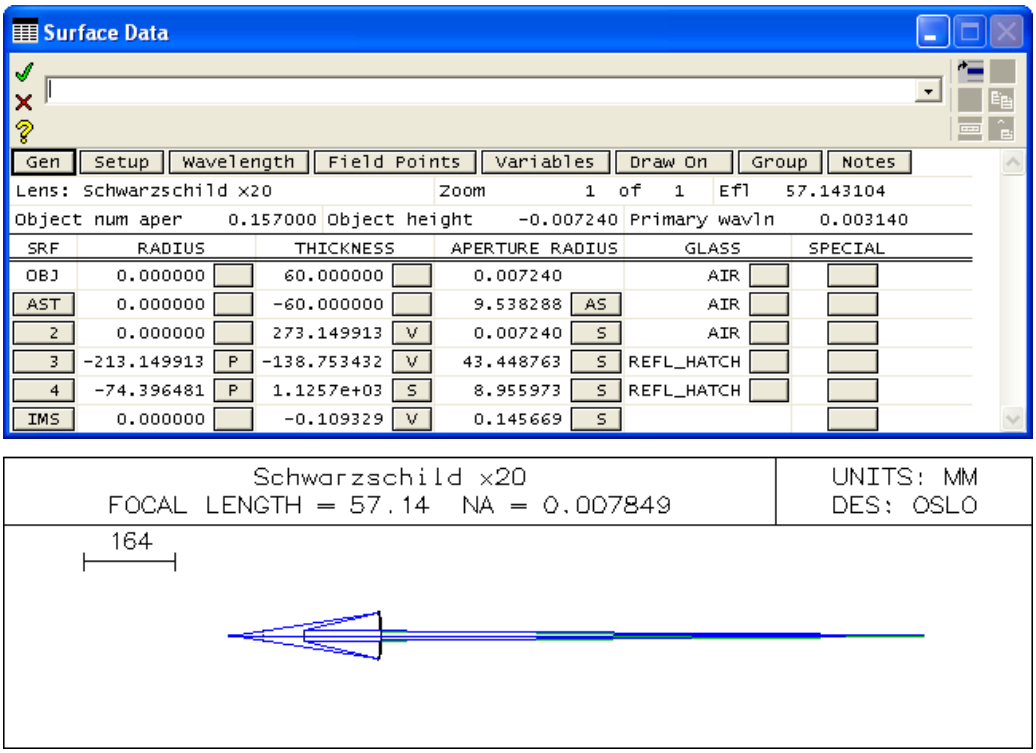


FIGURE 2.17 – Définition et schéma du Schwarzschild optimisé utilisé pour calculer la résolution atteignable.

de diffraction avec un écart normal RMS de $\sigma_\Delta = 0{,}035\lambda$.

Il est possible avec le logiciel OSLO de simuler un défaut de surface via l'injection des coefficients de Zernike pour cette surface ; ceci a été fait pour les deux miroirs du Schwarzschild de la Figure 2.17, chaque miroir ayant son propre jeu de coefficients. Le Schwarzschild a ensuite été ré-optimisé en modifiant légèrement les distances (positions relatives des deux miroirs, de l'objet et du plan image). La résolution a été enfin calculée en traçant l'énergie encerclée et en déterminant le rayon contenant 84% de l'énergie. La Figure 2.18 montre les erreurs de forme qui ont été ajoutées aux miroirs primaires. La Table 2.9 indique le rayon de la tache image mesurée et la résolution dans le plan objet correspondante pour les différents jeux de déformations générés.

TABLE 2.9 – Résolution estimée pour les différents jeux de déformations : le rayon de la tache image est mesuré de sorte qu'il contienne 84% de l'énergie de la tache ; la résolution objet est le rayon de la tache image ramené dans le plan objet (donc divisé par 20).

Deformation n°	Rayon de la tache image (μm)	Résolution objet (nm)
1	4.458	222.9
2	3.64	182
3	4.426	221.3
4	3.698	184.9
5	3.14	157
6	3.84	192

Cette étude nous montre donc que l'on attend une résolution de l'ordre de 150 à plus de 200 nm

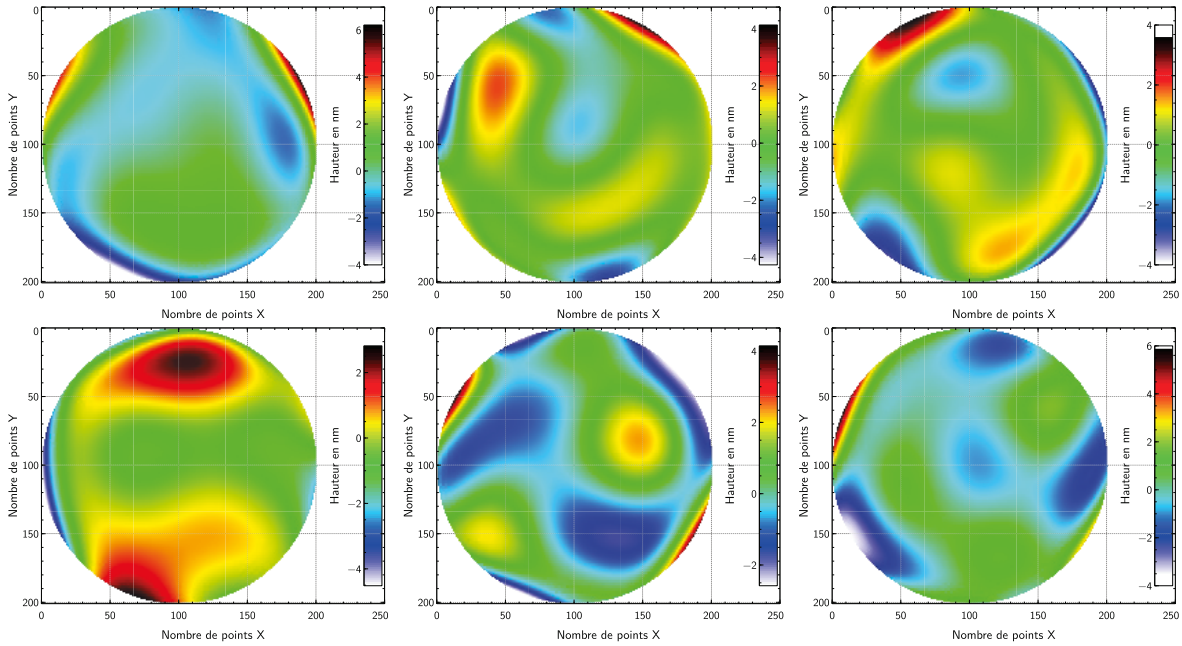


FIGURE 2.18 – Exemples de déformations générées pour le miroir primaire.

en raison des erreurs de forme des substrats. L'utilisation de miroirs pour un objectif de microscope à une si courte longueur d'onde limite donc très fortement la résolution que l'on peut espérer atteindre.

2.3.2 Élaboration du design final du microscope

Suite aux résultats précédents, on sait à présent que les défauts de forme ne nous permettent pas d'obtenir un système travaillant en limite de diffraction. Il n'est donc pas possible actuellement d'obtenir une résolution de 10 nm avec un objectif de microscope à miroirs à une longueur d'onde de 3,14 nm. Afin de définir précisément le schéma optimal du microscope, il faut donc commencer par adapter le cahier des charges que l'on avait défini initialement.

2.3.2.1 Ajustement du cahier des charges

On a vu au paragraphe 2.3.1 que les simulations prédisent une résolution de 150 nm au mieux. Nous avons choisi cependant de viser une résolution légèrement meilleure : **100 nm**. En effet, en pratique, plusieurs miroirs primaires et secondaires seront fabriqués. Il sera donc possible d'appairer les miroirs de manière à ce que les défauts de forme des miroirs primaire et secondaire se compensent au moins en partie, également en choisissant bien la rotation d'un miroir par rapport à l'autre autour de l'axe optique. Or, l'optimisation de l'appairage n'était pas prévue dans les simulations calculant la résolution attendue en sortie du Schwarzschild. Sur tous les miroirs fabriqués, on espère obtenir au moins une paire qui permettra une résolution côté objet de 100 nm.

Par ailleurs, on souhaite avoir un objectif qui soit le plus efficace possible en terme de nombre de photons. Il sera donc souhaitable d'utiliser une ouverture numérique plus grande que celle correspondant à une résolution de 100 nm pour un système optique limité par la diffraction, qui serait de 0,0157. On choisira d'utiliser une ouverture $\mathbf{ON_{obj} \geq 0{,}15}$. Il faudra veiller à ce que la taille de la tache image permette de conserver une résolution de 100 nm côté objet avec les erreurs de forme des substrats : en pratique, il faudra que le rayon de la tache image reste petit devant 100 nm $\times\, g_{Schw}$.

De manière analogue, on a considéré auparavant que l'ouverture numérique objet du système optique visible après le scintillateur est fixée par la conservation de la résolution au niveau du scintillateur. Elle peut en fait tout à fait être plus grande (là encore pour maximiser la collection des photons), tant que les aberrations du système visible restent suffisamment faibles pour permettre de conserver la résolution souhaitée.

Le grandissement du Schwarzschild est fixé à $\times 20$. Le grandissement du système optique visible sera adapté en fonction du détecteur choisi : on préfèrera en effet choisir un détecteur dont la taille des pixels est supérieure à celle annoncée au départ (voir Table 2.7) car les détecteurs à grands pixels sont généralement meilleurs dans le cas où les signaux sont faibles.

Enfin, pour des questions d'échantillonnage, il est toujours nécessaire d'imager un objet de longueur 100 nm sur deux pixels (voir 2.1.1.3). Si les dimensions du détecteur sont de $2\,048 \times 2\,048$ pixels^2, cela revient à avoir un champ objet de côté $1\,024 \times 100$ nm $= 102{,}4$ μm. Cette valeur est bien plus grande que ce dont on a besoin pour observer un échantillon biologique : le diamètre typique d'une cellule étant de l'ordre d'une dizaine de microns (voire quelques dizaines). Pour la suite, nous allons donc considérer que nous allons travailler avec un détecteur de dimensions $1\,024 \times 1\,024$ pixels^2. Ceci correspond à un champ objet (demi diagonale) de $y_{obj} = 36{,}2$ μm, le champ complet étant de $\approx 50 \times 50$ μm^2.

Table 2.10 – Récapitulatif du cahier des charges adapté.

Paramètre	**Valeur**
Résolution	**100 nm**
Ouverture numérique	$\geq$ **0,15**
Grandissement du Schwarzschild	**20**
Champ objet	36,2 μm
Distance de travail	quelques cm
Encombrement	$<$ 2 – 3 m

La Table 2.10 détaille le cahier des charges précisé pour l'optimisation du Schwarzschild, qui constituera la partie « rayons X » de l'objectif de microscope. La conception du système « visible » n'est pas détaillée dans cette partie. L'étude pour la conception de ce système a été démarrée ; elle montre que, malgré le faible champ, du chromatisme apparaît dans le champ et devra être corrigé.

2.3.2.2 Choix de l'ouverture numérique et optimisation du schéma optique

Afin de répondre à ce nouveau cahier des charges, deux configurations ont été étudiées :

— soit en conservant l'ouverture numérique calculée auparavant : $ON_{obj} = 0{,}15$

— soit en utilisant une ouverture plus élevée permettant de collecter plus de photons : $ON_{obj} = 0{,}3$.

Les deux cas ont été étudiés et comparés afin de déterminer le design optimal. Dans la suite de ce paragraphe, nous nous concentrerons sur la conception de l'objectif de Schwarzschild.

2.3.2.2.1 Optimisation du design avec une ouverture numérique $ON_{obj} = 0{,}15$

On commence par optimiser un objectif de Schwarzschild de grandissement $g_{Schw} = -20$ et d'ouverture numérique objet $ON_{obj} = 0{,}15$. Le point de départ pour l'optimisation a été calculé de la même façon que décrit au paragraphe 2.2.1. Le choix de la distance objet – pupille $\overline{AC}$ a été fait de sorte à obtenir

des miroirs de taille confortable. En effet, on a vu au paragraphe 2.2.1 que les diamètres des miroirs peuvent s'écrire :

$$\begin{cases} \phi_1 \approx 2 \times \tan\alpha \times \left(\overline{AC} - R_1\right) \\ \phi_2 \approx -2 \times \tan\alpha' \times \left(\overline{CA'} + R_2\right) = -2 \times \tan\alpha' \times \left(-g_{Schw} \times \overline{AC} + R_2\right) \end{cases} \tag{2.51}$$

Or, on a :

$$\begin{cases} R_2 = -2 \times (1-u) \times f' \\ R_1 = \dfrac{R_2}{u} \end{cases} \tag{2.52}$$

et :

$$f' = \frac{g_{Schw}}{1 - g_{Schw}} \times \overline{CA} = \frac{-g_{Schw}}{1 - g_{Schw}} \times \overline{AC} \tag{2.53}$$

On peut donc écrire :

$$\begin{cases} \phi_1 \approx 2\tan\alpha \times \left(1 - 2 \times \dfrac{1-u}{u} \times \dfrac{g_{Schw}}{1 - g_{Schw}}\right) \times \overline{AC} \\ \phi_2 \approx 2\tan\alpha \times \left(1 - \dfrac{2 \times (1-u)}{1 - g_{Schw}}\right) \times \overline{AC} \end{cases} \tag{2.54}$$

Pour une ouverture numérique objet $ON_{obj} = 0{,}15$, on peut calculer les diamètres des miroirs en fonction de la distance objet – pupille $\overline{AC}$: les valeurs sont indiquées en Table 2.11. Ces valeurs ne sont que des estimations des diamètres des miroirs (la valeur exacte pourra changer suite à l'optimisation du Schwarzschild). Néanmoins, elles indiquent des tendances pouvant aider au choix de $\overline{AC}$:

— pour les faibles valeurs de $\overline{AC}$ ($\leq$ 50 mm) : le diamètre du miroir secondaire est très faible (inférieur à 15 mm). On peut difficilement espérer qu'il sera possible d'obtenir des erreurs de forme extrêmement faibles (< 1 nm RMS) sur un diamètre aussi petit. Or, l'obtention d'erreurs de forme les plus faibles possibles est nécessaire si l'on veut atteindre une résolution de 100 nm ;

— pour les grandes valeurs de $\overline{AC}$ ($\geq$ 70 mm) : le diamètre du miroir primaire devient grand. En pratique, le diamètre physique du miroir sera supérieur au diamètre utile de manière à garantir la forme la meilleure possible sur la zone utile. Un miroir de trop grand diamètre serait là aussi difficile à fabriquer. Par ailleurs, plus $\overline{AC}$ est grande, plus l'encombrement ($= (1 + |g_{Schw}|) \times \overline{AC}$) sera important.

Nous avons donc choisi $\overline{AC} = 60$ mm, qui semblait être le meilleur compromis entre des diamètres de miroirs raisonnables et un encombrement modéré.

TABLE 2.11 – Estimation du diamètre des miroirs d'après les calculs paraxiaux.

Diamètre (mm) \ $\overline{AC}$	20 mm	30 mm	40 mm	50 mm	60 mm	70 mm	80 mm
Miroir primaire $\phi 1$	24,8	37,2	49,5	61,9	74,3	86,7	99,1
Miroir secondaire $\phi 2$	5,7	8,6	11,4	14,3	17,1	20,0	22,8

Le point de départ pour l'optimisation est donc le suivant :

— distance objet – pupille : $\overline{AC} = 60$ mm ;

— rayon de courbure du miroir primaire : $R_1 = -184,9$ mm ;

— rayon de courbure du miroir secondaire : $R_2 = -70,6$ mm ;

— distance entre les deux miroirs : $\overline{S_1S_2} = R_1 - R_2 = 114{,}3$ mm ;

— distance pupille – image : $\overline{CA_2} = 1\ 200$ mm.

Dans un premier temps, le rapport des rayons de courbure est optimisé pour annuler l'aberration sphérique du 3e ordre. Il apparaît en réalité que l'aberration sphérique du 5e ordre n'est pas négligeable à cette ouverture. On optimise donc ensuite les distances et rayons de courbure de manière à minimiser la taille RMS de la tache dans le plan image du Schwarzschild, correspondant à un point objet sur l'axe, en bord du champ ($y = y_{obj}$) et à un champ intermédiaire ($y = 0{,}7y_{obj}$). Le système optique obtenu est représenté en Figure 2.19. Le front d'onde pour les trois points du champ étudiés est représenté en Figure 2.20.

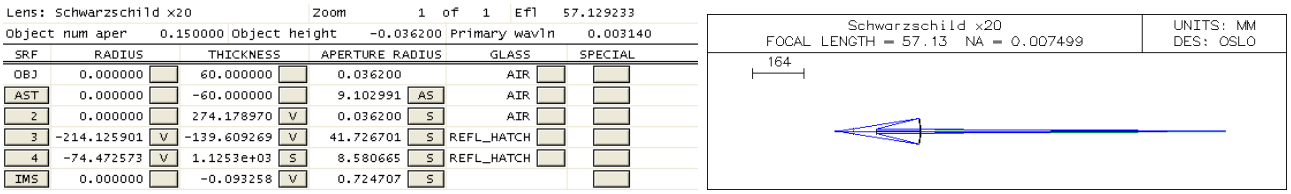
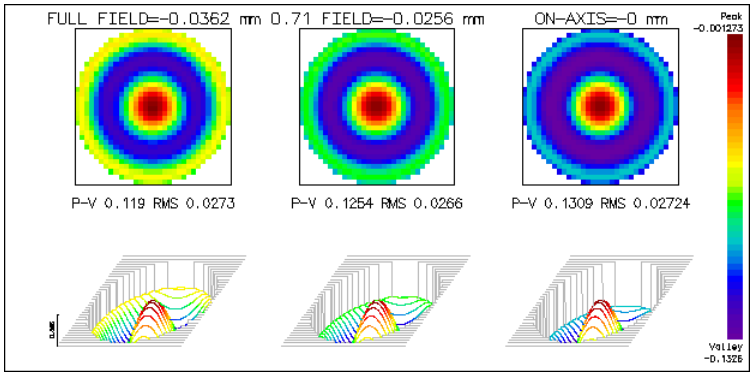


FIGURE 2.19 – Définition et schéma du Schwarzschild optimisé avec un grandissement $|g_{Schw}| = 20$ et une ouverture numérique objet $ON_{obj} = 0{,}15$. Les longueurs sont exprimées en mm, sauf la longueur d'onde (en μm).



(a)

Champ	Rayon de la tache (nm)	
	image	objet
$y = 0$	335	17
$y = 0{,}7y_{obj}$	335	17
$y = y_{obj}$	338	17

(b)

FIGURE 2.20 – Performances attendues du Schwarzschild sans erreurs de forme : (a) front d'onde calculé pour trois points du champ (de gauche à droite : en bord de champ, au champ intermédiaire et sur l'axe) (b) Rayon de la tache calculée dans le plan image et résolution associée dans le plan objet du Schwarzschild pour ces trois points du champ.

Les résultats de la Figure 2.20 montrent que sans tenir compte des erreurs de forme, on aboutit à un Schwarzschild limité par la diffraction, dont la résolution théorique est de l'ordre de 17 nm. En particulier, la courbure de champ du Schwarzschild optimisé est faible. La résolution finale sera alors limitée par la qualité des surfaces optiques que l'on aura réussi à atteindre.

Les caractéristiques du Schwarzschild optimisé sont les suivantes :

— distance objet – pupille : $\overline{AC} = 60$ mm (inchangée) ;

— miroir primaire :

- rayon de courbure : $R_1 = -214{,}1$ mm ;
- diamètre maximal de la zone utile : $\phi_1 = 84$ mm ;

— miroir secondaire :
  - rayon de courbure : $R_2 = -74{,}5$ mm ;
  - diamètre maximal de la zone utile : $\phi_1 = 17{,}2$ mm ;

— distance entre les deux miroirs : $\overline{S_1S_2} = R_1 - R_2 = -139{,}6$ mm ;

— distance pupille – image : $\overline{CA_2} = 1\ 200$ mm.

2.3.2.2.2 Optimisation du design avec une ouverture numérique $ON_{obj} = 0{,}3$

On étudie à présent un Schwarzschild dont l'ouverture numérique est plus élevée : $ON_{obj} = 0{,}3$ au lieu de 0,15. Ce doublement de l'ouverture numérique serait un avantage certain pour l'efficacité radiométrique du microscope. En effet, on a vu précédemment (voir paragraphe 2.2.2.3) que le flux en sortie du Schwarzschild est proportionnel au carré de l'ouverture numérique objet. On pourrait alors augmenter d'un facteur 4 le nombre de photons reçus par le détecteur. En revanche, l'augmentation de l'ouverture numérique signifie l'apparition d'aberrations. Pour conserver la résolution visée de 100 nm, il faudra s'assurer que la contribution des aberrations résiduelles après optimisation reste négligeable devant celle des erreurs de forme.

On a vu au paragraphe précédent que :

$$\begin{cases} \phi_1 \propto \tan\alpha \times \overline{AC} \\ \phi_2 \propto \tan\alpha' \times \overline{AC} \end{cases} \tag{2.55}$$

Pour conserver les mêmes ordres de grandeurs des diamètres des deux miroirs en doublant l'angle α, on doit donc réduire de moitié la distance $\overline{AC}$ (=30 mm). Un avantage non négligeable est que l'encombrement du Schwarzschild sera également réduit de moitié : $(1 + |g_{Schw}|) \times \overline{AC} \approx 630$ mm.

L'ouverture numérique étant désormais très élevée, des aberrations d'ordre élevé apparaissent. Le choix du rapport des rayons de courbure u ne permet plus d'annuler l'aberration sphérique totale, puisque les termes d'ordre 5 et 7 sont non négligeables. J'ai choisi d'asphériser le miroir primaire pour réduire les aberrations sphériques d'ordre 5 et 7.

Le Schwarzschild, dont le point de départ a été calculé comme dans le paragraphe 2.2.1, a été optimisé en utilisant les variables suivantes :

— les deux rayons de courbure, sachant que :
  — le grandissement du Schwarzschild est contraint à sa valeur souhaitée (-20) ;
  — les positions des miroirs sont contraintes de sorte à confondre leur deux centres de courbure et à les placer dans le plan de la pupille ;

— les coefficients d'asphérisation du miroir primaire correspondant aux ordres 6 et 8.

L'optimisation a été réalisée en cherchant à minimiser la taille RMS de la tache image sur l'axe, en bord de champ et à un champ intermédiaire ($y = 0{,}7y_{obj}$). Le système optique obtenu est représenté en Figure 2.21. Le front d'onde pour les trois points du champ étudiés est représenté en Figure 2.22.

La Figure 2.22 montre que ce Schwarzschild fonctionne en limite de diffraction sur une grande partie du champ (sans prendre en compte les erreurs de forme bien entendu). À plein champ, on voit apparaître de la coma (on n'a plus la symétrie de rotation autour du centre de courbure commun en raison de l'asphérisation du miroir primaire), mais celle-ci reste raisonnable puis qu'elle conduit à une résolution de 12 nm, ce qui est faible devant la contribution des erreurs de forme.

En revanche, le miroir primaire a un rayon de courbure de 107 mm pour un diamètre de environ 86,5 mm ; sa flèche est donc très grande : plus de 9 mm. Ce substrat sera donc très difficile à fabriquer.

Lens: Schwarzschild x20 | Zoom 1 of 1 | Efl 28.571429
Object num aper 0.300000 | Object height -0.036200 | Primary wavln 0.003140

SRF	RADIUS	THICKNESS	APERTURE RADIUS		GLASS	SPECIAL
OBJ	0.000000	30.000000	0.036200		AIR	
AST	0.000000	-30.000000	9.434564	AS	AIR	
2	0.000000	137.063579	0.036200	S	AIR	
3	-107.063579	-69.806094	43.233692	S	REFL_HATCH	A
4	-37.257485	562.742515	8.893674	S	REFL_HATCH	
IMS	0.000000	0.001864	0.724032	S		

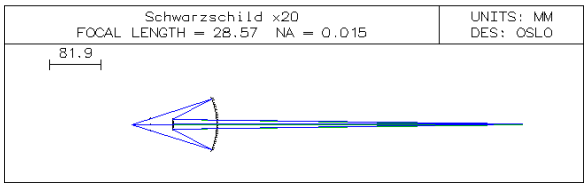
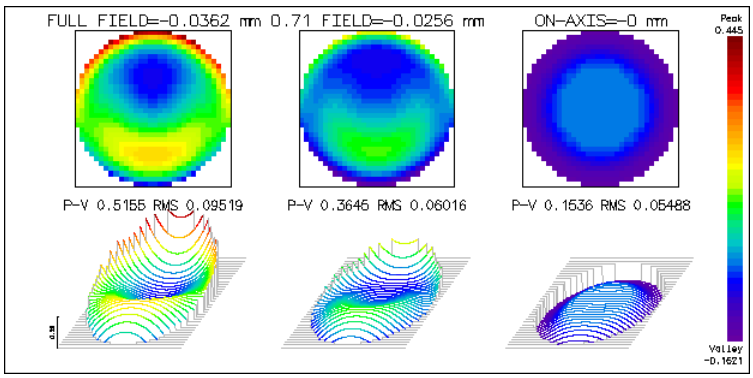


Figure 2.21 – Définition et schéma du Schwarzschild optimisé avec un grandissement $|g_{Schw}| = 20$ et une ouverture numérique objet $ON_{obj} = 0{,}3$. Les longueurs sont exprimées en mm, sauf la longueur d'onde (en μm).



(a)

Champ	Rayon de la tache (nm)	
	image	objet
$y = 0$	177	9
$y = 0{,}7y_{obj}$	184	9
$y = y_{obj}$	232	12

(b)

Figure 2.22 – Performances attendues du Schwarzschild sans erreurs de forme : (a) front d'onde calculé pour trois points du champ (de gauche à droite : en bord de champ, au champ intermédiaire et sur l'axe) (b) Rayon de la tache calculée dans le plan image et résolution associée dans le plan objet du Schwarzschild pour ces trois points du champ.

Par ailleurs, l'angle d'incidence varie beaucoup entre le centre et le bord des miroirs, particulièrement pour le miroir secondaire (les calculs seront détaillés dans le Chapitre 4 pour le Schwarzschild final). Sur le miroir primaire, l'angle d'incidence sur la zone utile varie entre 2,1° et 4,5° et sur le miroir secondaire il varie entre 6° et 12,8° environ. Ces grandes plages de variation de l'angle d'incidence rendent les revêtements multicouches extrêmement difficiles à concevoir et mesurer (ces aspects seront également traités au Chapitre 4 pour le Schwarzschild final). Ces deux limites de fabrication nous ont conduits à ne pas considérer cette solution à grande ouverture numérique.

2.3.2.2.3 Synthèse et mise aux calibres de la solution choisie

Pour conclure, nous avons choisi d'utiliser un Schwarzschild de grandissement $\times 20$ avec une ouverture numérique objet de $ON_{obj} = 0{,}15$. Cette solution semble être le meilleur compromis en terme d'efficacité photométrique, de résolution et de faisabilité tant pour le polissage des surfaces que pour les revêtements multicouches qu'elles vont accueillir.

Afin de finaliser la conception de ce système, il est nécessaire de le « mettre aux calibres ». Ceci signifie que l'on va adapter ce système à des calibres et outils déjà existant à l'atelier d'optique et qui vont servir à la fabrication des substrats de l'objectif (pour plus d'informations sur la fabrication des substrats, voir le Chapitre 4). Différents calibres, dont le rayon de courbure est proche de ceux désirés, sont disponibles à l'atelier d'optique : la Table 2.12 compare leurs caractéristiques à celles des miroirs du Schwarzschild optimisé.

Pour le miroir primaire, on avait le choix entre deux calibres ; le calibre dont le rayon de courbure

TABLE 2.12 – Rayon de courbure et diamètre des miroirs du Schwarzschild et des calibres disponibles.

	Miroir primaire			**Miroir secondaire**	
	Design	Calibre 1	Calibre 2	Design	Calibre
Rayon de courbure (mm)	214,1	212,61	210	74,5	74,668
Diamètre (mm)	84	60	120	17,2	120

était le plus proche de celui désiré avait cependant un diamètre trop petit (60 mm) et ne permettait donc pas de fabriquer le substrat du miroir primaire. Nous avons donc choisi d'utiliser les rayons de courbure suivants :

— pour le miroir primaire : -210 mm ;

— pour le miroir secondaire : $-74{,}668$ mm.

Les distances (entre la pupille et le miroir primaire ; entre les deux miroirs ; la position du plan image) ont ensuite été optimisées avec ces nouveaux rayons de courbure. Un schéma du système optimisé est donné en Figure 2.23.

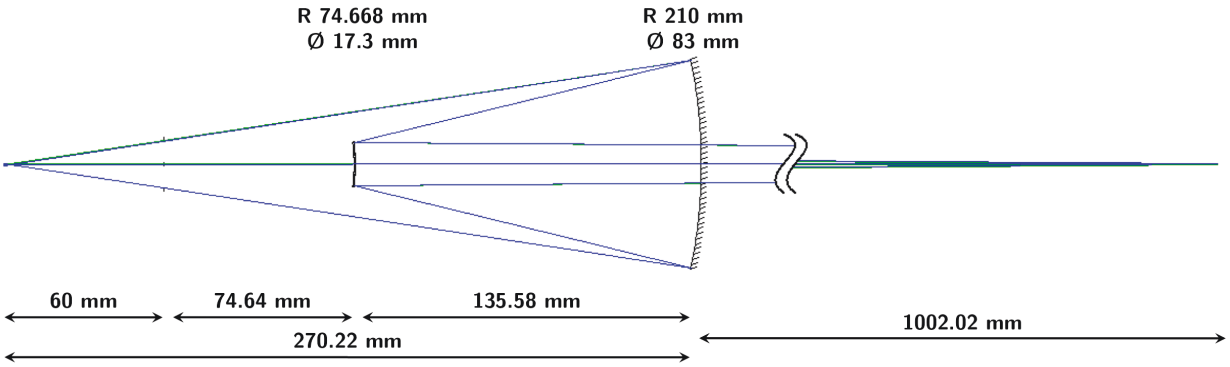


FIGURE 2.23 – Schéma du Schwarzschild après la mise aux calibres.

Après la mise aux calibres, les performances du Schwarzschild n'ont été que très peu modifiées ; sans tenir compte des erreurs de forme, il fonctionne toujours en limite de diffraction. En particulier, les rayons des taches images pour différents points du champ sont donnés dans la Table 2.13. La résolution ne devrait donc être limitée que par les erreurs de forme résiduelles des substrats.

TABLE 2.13 – Rayons des taches images et résolution objet correspondante (en nm) pour différents points du champ pour le Schwazrschild mis aux calibres et optimisé.

Champ	Rayon de la tache (nm)	
	image	objet
$y = 0$	360	18
$y = 0{,}7y_{obj}$	361	18
$y = y_{obj}$	363	18

2.3.2.3 Tolérancement

La dernière étape de la conception du schéma optique de l'objectif est son tolérancement. En effet, le système réel ne peut être parfaitement identique au système que l'on a conçu sur ordinateur

(par exemple : certaines distances non parfaitement identiques à celles visées, etc.) ; on a donc besoin de connaître la précision nécessaire de réglage et de stabilité de l'instrument. Autrement dit, on veut évaluer la robustesse du système auquel on a abouti à d'éventuels écarts par rapport à la solution idéale que l'on a trouvée suite à l'étape d'optimisation. Ceci nous permettra de déterminer la précision de fabrication nécessaire pour les surfaces optiques et la mécanique de tenue de l'objectif.

Le tolérancement a été fait grâce au logiciel OSLO, comme décrit au paragraphe 2.1.2, en étudiant l'influence de la variation de différents paramètres :

— les rayons de courbure des deux miroirs ;

— la position de la pupille par rapport à l'objet ;

— la distance entre les deux miroirs ;

— l'excentrement du miroir secondaire par rapport au miroir primaire ;

— la position des plans de l'objet et de l'image.

Il faut commencer par définir un critère qui déterminera si la dégradation du système engendrée par des petits défauts est acceptable ou non. Ce critère se basera sur la mesure du rayon RMS de la tache image, représentée par la fonction d'erreur OSLO associée. On continuera de travailler avec le Schwarzschild optimisé sans utiliser de déformation sur les miroirs. On souhaite que le Schwarzschild conserve une résolution proche de 100 nm avec les erreurs de forme des substrats. Nous allons considérer que la dégradation maximale tolérable correspondra à une taille RMS de la tache image de 1 μm côté image (50 nm côté objet), ce qui, couplé aux erreurs de forme des miroirs, permettrait de ne pas trop dégrader la résolution.

La fonction d'erreur du système nominal est $F_0 = \rho_{tache}^{RMS} = 90$ nm ; le critère que l'on choisit est le suivant : quelles que soient les modifications du système réel par rapport au système nominal, sa fonction d'erreur ne doit pas dépasser $F_{max} = 0{,}001$ mm. Pour chaque paramètre, on va commencer par estimer sa *tolérance*, c'est-à-dire sa plage de variation pour laquelle la fonction d'erreur varie dans un intervalle $[F_0 - \delta F; F_0 + \delta F]$ où $\delta F = (F_{max} - F_0)/\sqrt{N}$ avec N le nombre de paramètres devant être tolérancés ; ici $N = 7$ ce qui donne $\delta F = 3{,}4 \cdot 10^{-4}$ mm. Dans certains cas, on va utiliser une variable compensatrice (voir paragraphe 2.1.2) : nous allons considérer que le dispositif mécanique nous permettra de régler la position de l'objet ou de l'image (les deux cas seront étudiés).

On commence par étudier une variation des **rayons de courbure**. La tolérance sur les rayons de courbure s'exprime généralement en nombre de franges, en raison de la méthode de fabrication et métrologie des surfaces (voir Chapitre 4). Ce nombre de franges dépend du diamètre Φ de la surface ; il est environ égal à $\Phi^2/4\pi R_0^2 \times \Delta R$, où R_0 est le rayon de courbure de la surface, ΔR la variation du rayon de courbure et λ la longueur d'onde de mesure. Elle est de quelques franges pour les deux miroirs si l'on s'autorise à régler la position de l'objet ou de l'image (les deux cas sont équivalent). Or, l'atelier d'optique est tout à fait capable de polir les surfaces avec une précision sur le rayon de courbure de l'ordre de 0,1 frange. Par ailleurs, il sera toujours possible, une fois les surfaces optique fabriquées, de mesurer précisément leur rayon de courbure et ré-optimiser en fonction les distances (positions des miroirs et du plan image par rapport à la pupille). On a d'ailleurs vérifié à la main qu'une erreur de $\pm 0{,}1$ frange sur les rayons de courbure ne détériore pas la résolution du Schwarzschild : lorsque le rayon de courbure du miroir primaire varie de $+0{,}1$ frange ou $-0{,}1$ frange et que les distances sont ré-optimisées, on obtient un Schwarzschild fonctionnant en limite de diffraction avec la même fonction d'erreur que le système nominal ($F = 9 \cdot 10^{-5}$ mm). Nous allons donc considérer pour la suite que

les rayons de courbures ne sont pas critiques pour le tolérancement et n'allons plus en tenir compte dans la suite de ce paragraphe : il reste donc $N = 5$ paramètres à tolérancer, ce qui correspond à $\delta F = 4 \cdot 10^{-4}$ mm.

On étudie ensuite l'influence de la variation de la **position de la pupille** le long de l'axe optique par rapport à la position du centre de courbure commun aux deux miroirs. Une variation de la position de la pupille de ±10 mm autour de sa position nominale induit de très faibles variations de la fonction d'erreur (de l'ordre de $1 \cdot 10^{-8}$ mm). La position de la pupille n'est donc pas du tout sensible ; on l'ignorera également dans la suite du tolérancement. Il reste donc 4 paramètres à tolérancer ; en réalité, un paramètre (soit la position de l'objet, soit celle de l'image) sert de variable compensatrice pour le calcul des tolérances sur les trois autres paramètres. Pour la suite des calculs, on va donc prendre $N = 3$ soit $\delta F = 5{,}25 \cdot 10^{-4}$ mm. Dans la suite de ce paragraphe, on utilisera le terme « interstice » pour désigner la distance entre les deux miroirs (voir Figure 2.24) et le terme « excentrement », ou « décentrement » pour qualifier la distance, dans le plan perpendiculaire à l'axe optique, entre le sommet du miroir secondaire et l'axe optique (l'axe optique étant défini ici comme étant celui du miroir primaire).

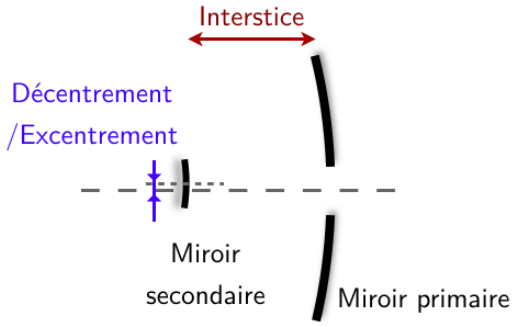


FIGURE 2.24 – Illustration de l'interstice et du décentrement.

Premier cas : la position de l'objet est fixe On utilise la position du plan de l'image comme variable compensatrice ; dans la pratique, cela signifie que soit le scintillateur (et ce qui le suit), soit l'ensemble {objet + Schwarzschild} devra pouvoir être déplacé pour optimiser la mise au point de l'image. Les tolérances ainsi calculées sont regroupées dans la Table 2.14. La première colonne montre les tolérances sans prendre en compte la variable compensatrice : elle représente les tolérances pour la stabilité du système pendant la prise d'une image. La deuxième colonne tient compte du compensateur : par exemple, une erreur de moins de ±140 μm sur la position de l'objet peut être rectifiée en déplaçant le plan image, tout en gardant une qualité optique de l'image convenable. Le détecteur devra alors pouvoir être déplacé sur une longueur donnée dans la troisième colonne.

TABLE 2.14 – Tolérances calculées pour le Schwarzschild en utilisant la position de l'image comme variable compensatrice (*comp. = compensateur/variable compensatrice*).

Paramètre	Tolérance (μm)		Plage de variation	
	sans comp.	avec comp.	du compensateur (mm)	du grandissement $\lvert g_{Schw} \rvert$
Position de l'objet	0,4	140	de −53,80 à 59,33	de 19,07 à 21,03
Interstice	0,16	535	de −365,36 à 965,93	de 13,78 à 36,44
Décentrement	4,94	4,94	–	–

Ces calculs montrent que le centrage du miroir secondaire par rapport au miroir primaire est le paramètre le plus contraignant. La tolérance de 5 μm n'est cependant pas irréalisable. En revanche, en raison de la faible ouverture numérique côté image, le Schwarzschild a une très longue profondeur de champ image. Ainsi, si la position du plan image est utilisé comme variable compensatrice, celui-ci doit pouvoir être déplacé sur une distance considérable (plusieurs dizaines, voire centaines de centimètre), ce qui n'est pas très réaliste. Par ailleurs, on peut noter que le grandissement varie beaucoup, notamment lorsque le déplacement du plan image compense une variation de l'interstice.

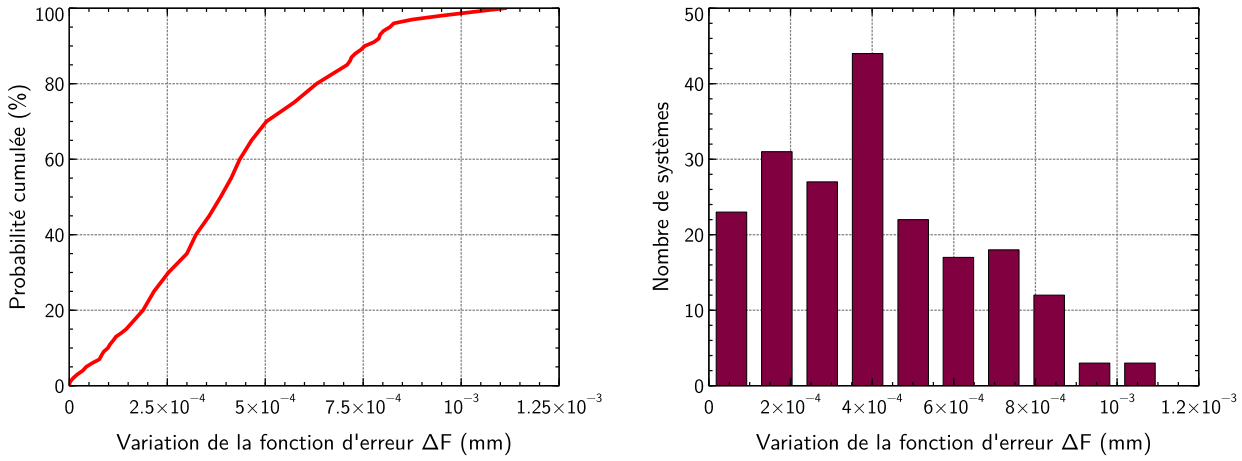
Second cas : la position de l'image est fixe On utilise la position du plan de l'objet comme variable compensatrice ; dans la pratique, cela signifie que soit l'échantillon, soit le Schwarzschild et tout ce qui le suit, devra pouvoir être déplacé pour optimiser la mise au point de l'image formée par le Schwarzschild. Les tolérances ainsi calculées sont regroupées dans la Table 2.15

Table 2.15 – Tolérances calculées pour le Schwarzschild en utilisant la position de l'objet comme variable compensatrice (*comp. = compensateur/variable compensatrice*).

Paramètre	Tolérance (μm)		Plage de variation	
	sans comp.	avec comp.	du compensateur (mm)	du grandissement $\lvert g_{Schw}\rvert$
Interstice	0,16	64	de $-0{,}157$ à 0,157	de 19,99 à 20,01
Décentrement	4,94	4,94	–	–
Position de l'image	160	$59 \cdot 10^3$	de $-0{,}139$ à 0,154	de 18,99 à 21,02

Dans ce cas, le décentrement reste le paramètre le plus critique, avec la tolérance de 5 μm sur le centrage entre les deux miroirs (cette valeur n'a pas changé par rapport au cas précédent car la variable compensatrice ne peut diminuer la coma introduite par le décentrement du miroir). La précision requise pour le réglage de l'interstice est à présent de 64 μm. La plage de variation associée de la position du plan de l'échantillon est relativement faible ($\approx$ 0,3 mm au total). De même qu'auparavant, la position du plan image est peu sensible grâce à la faible ouverture numérique image (donc longue profondeur de champ). Ici, la compensation par le déplacement du plan objet induit des variations du grandissement beaucoup plus acceptables (5% au maximum). Cette solution semble donc être celle à privilégier. La précision requise de mise au point sur l'objet sera de 400 nm (voir Table 2.14 : précision sur la position de l'objet sans utiliser de compensateur).

Pour finir, une analyse de Monte Carlo a été faite. Le logiciel OSLO peut générer un certain nombre de systèmes aléatoires pour lesquels les paramètres dont on a calculé les tolérances ont été modifiés aléatoirement dans des intervalles définis par les tolérances. Par défaut, le décentrement a une distribution gaussienne et les rayons de courbure et distances ont une distribution uniforme. Suite aux calculs des tolérances présentés auparavant, 200 systèmes ont été générés ; pour chacun, la fonction d'erreur a été calculée et comparée au critère initial que l'on avait choisi : $F \leq F_{max} = 0{,}001$ mm. Pour chaque système, la fonction d'erreur est comparée à celle du système nominal. On peut tracer la proportion de systèmes dont la fonction d'erreur a varié de moins de ΔF, en fonction de ΔF. Cette courbe est représentée en Figure 2.25. Elle nous permet de déterminer la probabilité que le système réel respecte le critère que l'on a fixé au départ. Dans notre cas, on voit que 97% des systèmes générés respectent notre critère ; on peut donc supposer que la probabilité d'obtenir en pratique un système bon est de 97% avec les tolérances calculées.



(a) (b)

FIGURE 2.25 – (a) Probabilité cumulée en fonction de la variation de la fonction d'erreur calculée pour 200 systèmes (b) Répartition des systèmes calculés en fonction de l'écart en leur fonction d'erreur et la fonction d'erreur du système nominal.

Afin de vérifier que le critère choisi était bien cohérent, j'ai ajouté les déformations aux miroirs de certains systèmes générés et ai calculé la résolution obtenue (voir Table 2.16). On voit en Table 2.16 les résultats obtenus pour deux des 200 systèmes : le Schwarzschild n°1 correspond au dernier système respectant le critère (F=8,738 $\cdot 10^{-4}$ mm) et le Schwarzschild n°2 correspond à un des systèmes dont la fonction d'erreur est la plus probable, soit autour de F=4 $\cdot 10^{-4}$ mm (voir l'histogramme Figure 2.25(b)). Les résultats de la Table 2.16 montrent que pour les deux systèmes présentés la résolution

TABLE 2.16 – Résolution calculée (rayon contenant 84% de l'énergie de la tache) dans le plan image et le plan objet pour le système nominal et deux systèmes perturbés.

Déform.	**Nominal**, F_0=9 $\cdot 10^{-5}$ mm Résolution :		**Schw. 1**, F=8,7 $\cdot 10^{-4}$ mm Résolution :		**Schw. 2**, F=4,4 $\cdot 10^{-4}$ mm Résolution :	
	image (μm)	objet (nm)	image (μm)	objet (nm)	image (μm)	objet (nm)
1	4,458	222,9	4,691	234,55	4,193	209,65
2	3,64	182	3,664	183,2	3,661	183,05
3	4,426	221,3	4,309	215,45	4,699	234,95
4	3,698	184,9	4,221	211,05	3,884	194,2
5	3,14	157	3,95	197,5	3,724	186,2
6	3,84	192	4,296	214,8	3,428	171,4

change relativement peu par rapport au système nominal. Le critère que l'on a choisi pour les calculs des tolérances est donc bien pertinent.

Pour récapituler :

— le réglage de la mise au point se fera sur l'objet ; il nécessitera une précision de 400 nm et une plage de variation de quelques dixièmes de millimètres ;

— la précision sur l'interstice doit être de 64 μm (ou moins) ;

— le centrage des deux miroirs devra être précis à moins de 5 μm ;

— les tolérances sur les rayons de courbure, la position de la pupille et la position du plan image ne sont pas critiques.

2.3.3 Récapitulatif du design choisi

En conclusion, nous avons étudié trois familles de solutions possibles pour la construction d'un objectif de microscope pour la fenêtre de l'eau à une longueur d'onde de 3,14 nm :

— un Schwarzschild seul ;

— un Schwarzschild suivi d'un troisième miroir sphérique ;

— un Schwarzschild suivi d'un scintillateur et d'un système optique fonctionnant dans le visible.

En raison du fort grandissement, le Schwarzschild s'avère très difficile à réaliser car il nécessite un très fort encombrement (de l'ordre de plusieurs dizaines de mètres). Le schéma à trois miroirs est quant à lui relativement peu efficace du point de vue du nombre de photons.

Nous avons donc choisi de baser le schéma de l'objectif de microscope sur :

— un objectif de Schwarzschild, d'ouverture numérique objet $ON_{obj} = 0{,}15$ et de grandissement $g_{Schw} = -20$. Les miroirs du Schwarzschild ont les caractéristiques suivantes :

  1. miroir primaire : rayon de courbure $R_1 = -210$ mm, diamètre utile $\phi_1 = 83$ mm ;
  2. miroir secondaire : rayon de courbure $R_2 = -74{,}668$ mm, diamètre utile $\phi_2 = 17{,}3$ mm ;

— un cristal de YAG:Ce, qui convertit les photons X en photons visibles, en forme de demi-boule de manière à limiter les aberrations géométriques et chromatiques ;

— un objectif visible d'ouverture numérique objet $ON_v \geq 0{,}0755$, dont le design n'est pas encore fixé (probablement un Schwarzschild également). Son grandissement sera adapté aux dimensions du pixel du détecteur (non encore choisi).

Les miroirs du Schwarzschild constituant la partie « rayons X » du microscope vont être fabriqués par l'atelier d'optique du laboratoire.

Pour la suite, nous allons donc nous focaliser sur la partie « rayons X » de l'objectif du microscope, à savoir le Schwarzschild. Nous étudierons notamment les revêtements multicouches dédiés au Schwarzschild (voir Chapitre 3 et 4), ainsi que la fabrication et la métrologie des surfaces optiques correspondant aux miroirs primaire et secondaire et la conception du schéma mécanique pour la tenue du Schwarzschild (voir Chapitre 4).

Chapitre 3

Revêtements multicouches de très faible période

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à des revêtements multicouches contenant des couches de très faible épaisseur. Dans un premier temps, nous présenterons les moyens à notre disposition pour la fabrication et la métrologie de revêtements multicouches. Nous détaillerons ensuite les résultats de deux études de revêtements à faible période : tout d'abord des revêtements chrome – carbure de bore (Cr/B_4C) pour lesquels nous nous intéresserons en particulier au comportement des matériaux aux interfaces ; puis des revêtements à base de chrome et de scandium pour la fenêtre de l'eau.

3.1 Fabrication et caractérisation de revêtements multicouches

3.1.1 Fabrication des revêtements multicouches au Laboratoire Charles Fabry

La fabrication de composants tels que les miroirs à revêtement multicouche requiert de travailler dans un environnement très propre. Au Laboratoire Charles Fabry, dans le cadre de la centrale CEMOX (CouchEs Minces pour l'Optique XUV), nous disposons d'une salle blanche de classe 1000 (ISO 6 de la norme ISO 14644-1 ; moins de 1000 particules de plus de 0,5 μm de diamètre par pied cube d'air). Afin de satisfaire les exigences de propreté, la salle blanche doit être maintenue en légère surpression de manière à empêcher les poussières de pénétrer. L'air y est très fréquemment renouvelé après filtrage et la salle blanche est également contrôlée en température et en humidité. Dans la salle blanche sont installés plusieurs bâtis permettant la fabrication de revêtements multicouches. Nous disposons également de sorbonnes de chimie pour le nettoyage des échantillons avant dépôt.

Les revêtements multicouches peuvent être déposés par plusieurs méthodes, physique (à partir de matériaux solides) ou chimique (à partir de matériaux liquides ou gazeux), la voie physique étant la plus répandue. Différentes techniques de dépôt par voie physique existent, parmi lesquelles la pulvérisation cathodique, la pulvérisation ionique, l'évaporation assistée et l'ablation laser.

Durant ma thèse, j'ai eu l'occasion de travailler avec deux techniques de dépôt de couches minces : la pulvérisation cathodique magnétron et la pulvérisation ionique. Ces deux méthodes sont détaillées dans la suite de cette section.

3.1.1.1 Dépôt par pulvérisation cathodique magnétron

La pulvérisation cathodique est une méthode de fabrication de couches minces par voie physique. Nous présentons dans cette partie son principe de fonctionnement, puis le bâti de dépôt par pulvérisation cathodique dont nous disposons au laboratoire.

3.1.1.1.1 Principe du dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique est une technique de dépôt de couches minces basée sur la pulvérisation d'un matériau solide via la génération d'un plasma dans un gaz à basse pression. Le matériau à déposer est sous forme de « cible », c'est-à-dire de plaque de quelques millimètres d'épaisseur, la composition de la cible devant être très pure (le plus souvent mieux que 99,9%) de manière à garantir autant que possible la pureté de la couche déposée. Il existe deux modes de pulvérisation cathodique : un mode « DC » en courant continu, et un mode « RF » radio-fréquence. Le choix du mode dépend du matériau à déposer : s'il s'agit d'un matériau isolant, on ne peut pas utiliser le mode DC.

La Figure 3.1 illustre le principe de dépôt par pulvérisation cathodique. Dans le cas d'un dépôt en mode DC, une tension continue négative est appliquée à la cible (cathode), et le substrat sur lequel on veut déposer le matériau est relié à la masse (anode). On introduit dans le bâti de dépôt, préalablement maintenu à une pression résiduelle de l'ordre de 10^{-5} mTorr [1], un gaz à très basse pression de l'ordre de quelques mTorr. La différence de potentiel entre les deux électrodes entraîne l'ionisation du gaz, ce qui va créer un plasma, composé d'électrons, d'ions positifs et d'atomes neutres. Un courant apparaît entre l'anode et la cathode : les électrons sont attirés par l'anode et vont au passage entrer en collision avec des atomes neutres de gaz pour créer d'autres ions positifs. Les ions positifs sont attirés par la cathode, c'est-à-dire la cible, dont ils vont arracher des atomes en la percutant. Ces atomes ainsi arrachés de la cible vont être pulvérisés dans toute l'enceinte, et en particulier sur le substrat. Une couche du matériau de la cible est donc déposée sur le substrat.

FIGURE 3.1 – Principe de fonctionnement de la pulvérisation cathodique

Ceci n'est cependant possible que si le matériau de la cible est conducteur. Dans le cas contraire, aucun courant ne peut traverser le matériau de la cible et les ions positifs vont s'accumuler sur sa surface, ce qui annule très rapidement le courant entre anode et cathode. Afin de contourner ce problème, on va utiliser le mode « RF », ou radio-fréquence : dans ce cas, on n'applique plus une

1. On rappelle que : 1 mTorr $\approx$ 0.13 Pa $\approx 1{,}3 \cdot 10^{-3}$ mbar

tension continue à la cible, mais une tension alternative au travers d'une capacité de découplage, dont la fréquence est dans le domaine radiofréquence (en général 13,56 MHz). Il y a alors l'apparition d'une tension d'auto-polarisation continue et négative sur la cible et la pulvérisation du matériau de la cible peut s'effectuer.

Parallèlement, on peut également équiper la cible d'un dispositif magnétron, composé de différents aimants de polarité opposée qui vont créer un champ magnétique au dessus de la cible. Les électrons et le plasma vont alors être confinés dans une zone proche de la cible. La probabilité qu'il y ait une collision entre un électron et un atome de gaz est alors augmentée, ce qui va permettre d'augmenter la vitesse de dépôt du matériau sur le substrat. Dans ce cas en revanche, la cible du matériau sera érodée de manière inhomogène puisque le bombardement par les ions se fera selon les lignes de champ magnétique, et elle devra donc être remplacée alors qu'elle ne sera que relativement peu consommée.

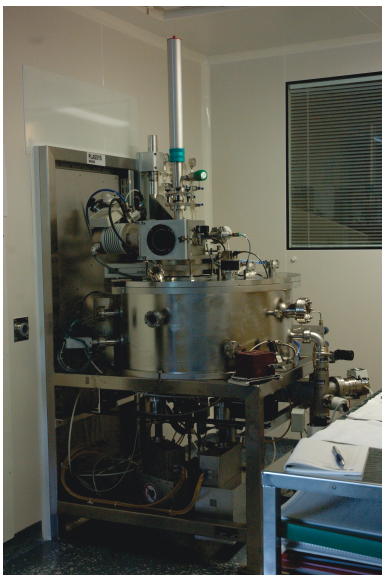
Le processus de dépôt décrit précédemment utilise en règle générale un gaz inerte pour la création du plasma, tel que l'argon. Il existe également un autre mode de dépôt, dit en atmosphère réactive, pour lequel on va introduire pendant le dépôt en plus du gaz inerte, un gaz chimiquement actif, en général du diazote N_2 ou du dioxygène O_2. Le gaz réactif va réagir avec la cible et sera ensuite pulvérisé sur le substrat en même temps que les atomes de la cible. Les molécules de gaz réactif dissociées par le plasma réagissent également avec la surface du film en cours de croissance. La couche ainsi déposée aura donc une composition différente de celle de la cible.

3.1.1.1.2 Le bâti de pulvérisation cathodique du LCF (Plassys MP800S)

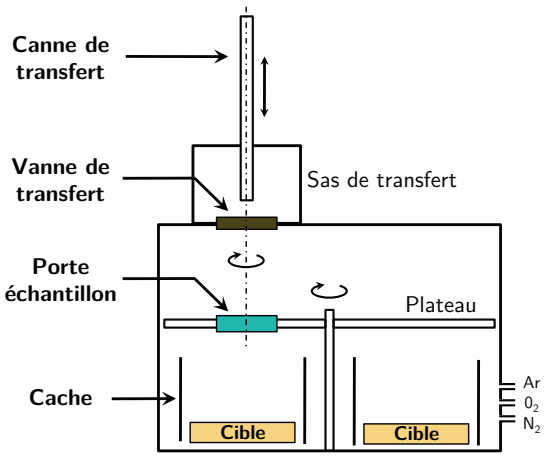
La machine de dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique disponible au laboratoire a été conçue par la société Plassys® (voir Figure 3.2). Il s'agit d'un modèle MP800, composé d'une enceinte cylindrique de 800 mm de diamètre (voir [Gautier2005a] et [Gautier2005b]). La machine MP800 dispose d'un sas de transfert, qui permet d'introduire le substrat à revêtir dans le bâti de dépôt sans casser le vide à l'intérieur (voir la Figure 3.2(a) et 3.2(b)). Elle est équipée de deux pompes : une pompe à membranes pour réaliser un vide primaire et une pompe cryogénique, qui permet d'obtenir un vide résiduel de l'ordre de 10^{-8} Torr. La pression de travail utilisée pendant le dépôt est typiquement comprise entre 0,6 mTorr et 10 mTorr. Le gaz utilisé est l'argon ; il est également possible de réaliser des dépôts en atmosphère réactive (O_2 ou N_2).

La MP800 comporte quatre supports de cibles (voir Figure 3.2(c) et 3.2(d)), dont deux fonctionnant en mode DC et deux en mode RF. Les courants appliqués aux cibles DC sont généralement compris entre 50 mA et 200 mA, et les puissances appliquées aux cibles RF sont comprises entre 80 W et 150 W. Chaque cible, de dimensions 80 mm × 200 mm, est équipée d'une « boîte », c'est-à-dire d'un cache tout autour de la cible afin de limiter la contamination entre cibles.

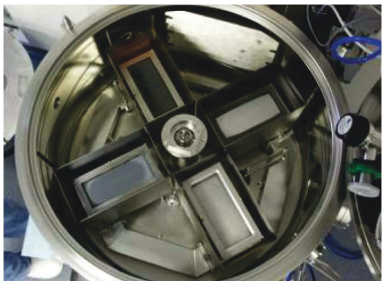
L'échantillon à revêtir est placé dans un porte-échantillon dans le sas de transfert. Une fois que le vide est fait dans le sas, le porte-échantillon est transféré dans l'enceinte via la canne de transfert, puis vient se positionner dans un plateau situé à 10 cm au dessus des cibles. Ce plateau peut tourner sur lui-même autour de l'axe central du bâti de dépôt (rotation planétaire), et le porte-échantillon peut également tourner autour de son axe (rotation satellitaire ; voir Figure 3.2(b) et 3.2(d)). Si la vitesse de rotation satellitaire est suffisamment grande, elle permet d'assurer un dépôt à symétrie de révolution. Pour cela, on utilise pendant les dépôts une vitesse satellitaire de 50 tours par minute. La rotation planétaire permet de disposer le substrat au dessus de la cible désirée pour déposer une couche du matériau correspondant. La vitesse de rotation planétaire peut varier de 0,2°/s à 3°/s. Elle détermine la durée que va passer le substrat au-dessus d'une cible, donc l'épaisseur de la couche déposée du



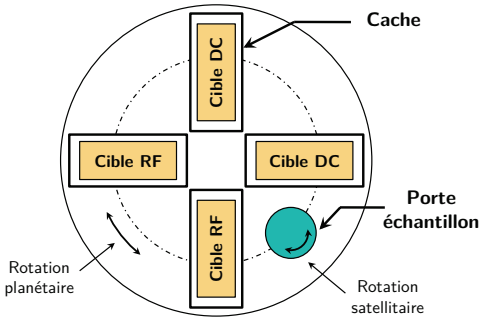
(a) La machine de dépôt MP800



(b) Schéma de la MP800



(c) Vue de l'intérieur de la MP800



(d) Schéma de la MP800 vue de dessus

FIGURE 3.2 – Présentation de la machine de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron MP800.

matériau correspondant.

Lors d'un dépôt, on commence toujours par réaliser une « pré-pulvérisation » : il s'agit de pulvériser le matériau des cibles à utiliser sans « arroser » l'échantillon pour nettoyer les cibles avant de démarrer le véritable dépôt. Ceci permettra d'obtenir un revêtement contenant des couches les plus pures possibles.

La MP800 ne dispose pas de moyen direct permettant la mesure en temps réel de l'épaisseur déposée. Le contrôle des épaisseurs des couches se fait donc grâce à une étape d'étalonnage, qui va déterminer la relation précise, pour chaque matériau et à une pression du gaz donnée, entre l'épaisseur effectivement déposée et la vitesse de passage du substrat au dessus de la cible correspondante. Par ailleurs, la vitesse de dépôt d'un matériau évolue au cours du temps, avec l'usure des cibles et des aimants. Il est donc nécessaire de bien calibrer la vitesse de dépôt des matériaux avant toute fabrication d'un revêtement multicouche [Emprin2014].

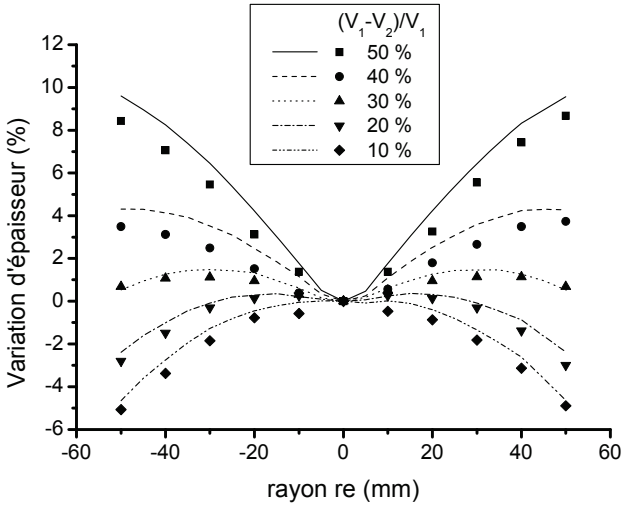
L'étalonnage se fait par allers-retours entre la fabrication d'échantillons et la mesure des épaisseurs déposées (méthodes de mesure détaillée au paragraphe 3.1.2.1). Elle est effectuée en deux étapes :

— *calibration en couches simples* : pour un matériau donné, on dépose plusieurs couches minces du matériau, chaque échantillon correspondant à une vitesse de passage différente. On mesure alors l'épaisseur de la couche déposée pour chaque échantillon par réflectométrie X rasant (voir paragraphe 3.1.2.1), ce qui donne un premier lien entre vitesse de passage et épaisseur de la

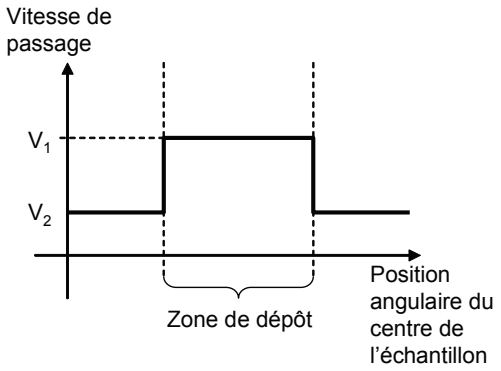
couche du matériau. On reproduit cette étape pour tous les matériaux dont on a besoin pour le revêtement final ;

— *calibration en multicouches* : cette étape est nécessaire en raison des effets d'interface qui peuvent apparaître entre deux matériaux (par exemple interdiffusion) et donc modifier la correspondance entre vitesse de passage au dessus d'une cible et épaisseur déposée. On va donc fabriquer plusieurs échantillons multicouches, pour lesquels est modifiée uniquement l'épaisseur d'un matériau (donc la vitesse de passage au dessus de la cible correspondante). On mesure alors les épaisseurs obtenues par réflectométrie X rasant pour obtenir la nouvelle relation vitesse–épaisseur. La même procédure est utilisée pour calibrer l'épaisseur de l'autre matériau (ou des autres matériaux) de la multicouche.

En raison de la non-uniformité du procédé de dépôt [Gautier2005a], le profil d'uniformité, c'est-à-dire le profil radial d'épaisseur sur l'échantillon, n'est pas constant mais parabolique si l'échantillon passe à vitesse constante au dessus de la cible [Gautier2005a]. Afin de corriger ce gradient latéral d'épaisseur, il est possible avec la MP800 de changer la vitesse de rotation du plateau lorsque l'échantillon passe au dessus de la cible [Hardouin2007, Montcalm1998]. Expérimentalement, on remarque que pour un substrat plan, l'épaisseur déposée au centre est plus grande qu'au bord. Afin de corriger cette non-uniformité, on va donc augmenter la vitesse de passage lorsque le centre de l'échantillon verra le dépôt (en pratique : la vitesse sera modifiée lorsque le substrat dépassera le cache pour arriver au dessus de la cible). La vitesse planétaire sera ensuite diminuée à sa valeur initiale lorsque le centre de l'échantillon aura atteint l'autre extrémité de la cible (voir Figure 3.3(b)). Un choix judicieux du rapport des deux vitesses peut permettre de corriger le profil radial d'uniformité en minimisant la variation d'épaisseur sur l'échantillon, comme le montre la Figure 3.3(a).



(a)



(b)

Figure 3.3 – (a) Profils d'uniformité mesurés (points) et simulés (traits) pour différents pourcentages de changement de vitesse pour une multicouche Mo/Si (b) Profil de variation de vitesse utilisé. La zone de dépôt correspond à la zone délimitée par le cache placé autour de la cible.
Cette figure est extraite de l'Habilitation à diriger des Recherches de Franck Delmotte [Delmotte2010]

Par ailleurs, l'épaisseur déposée varie en fonction de la distance entre la cible et l'échantillon. Le profil d'épaisseur peut là aussi varier sur l'échantillon si celui-ci n'est pas plan, mais sphérique par exemple. Dans certains cas, il peut également être souhaitable de déposer un revêtement à gradient

latéral d'épaisseur (profil radial non uniforme).

Afin d'avoir un profil radial d'épaisseur le plus proche possible de celui souhaité, il est donc nécessaire de tenir compte des différents paramètres cités auparavant, soit :

— la non-uniformité naturelle due à la technique/géométrie de dépôt ;

— la forme du substrat utilisé, et notamment sa flèche ;

— le profil radial d'épaisseur effectivement désiré (uniforme ou non).

On pourra alors adapter les vitesses de passage au dessus des cibles en fonction des contraintes précédentes.

3.1.1.2 Dépôt par pulvérisation ionique

La pulvérisation ionique, ou pulvérisation par faisceau d'ions, est une autre technique de dépôt de couches minces par voie physique. Nous présentons ici le principe de fonctionnement de cet méthode, puis le bâti de dépôt par pulvérisation ionique dont on dispose au laboratoire.

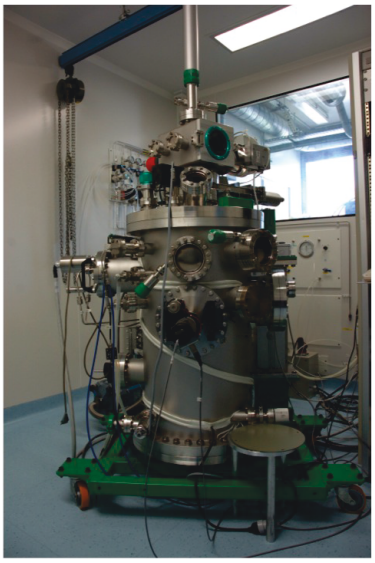
3.1.1.2.1 Principe de la pulvérisation par faisceau d'ions

La pulvérisation ionique est également basée sur la pulvérisation d'atomes d'une cible sur un échantillon. Ici, la cible est bombardée par un faisceau d'ions provenant d'un canon à ions. De manière analogue à la pulvérisation cathodique, les ions incidents sur la cible vont arracher des atomes qui vont être pulvérisés dans un cône d'émission, donc en particulier sur l'échantillon à revêtir. La pulvérisation ionique dispose généralement d'un neutraliseur qui va envoyer un faisceau d'électrons dans l'enceinte (dans une zone proche de la cible) afin d'éviter l'accumulation de charges positives au niveau de la cible pour permettre le dépôt de matériaux isolants.

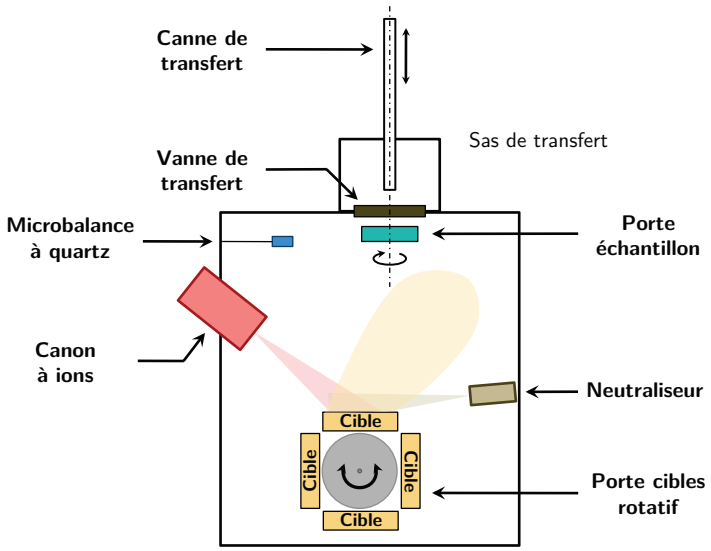
3.1.1.2.2 La machine de pulvérisation ionique du LCF (bâti IBS)

La machine de pulvérisation ionique IBS (*Ion Beam Sputtering*) est représentée en Figure 3.4(a). De manière analogue au bâti MP800, le bâti IBS dispose d'un système de pompage ultra-vide composé d'une pompe primaire pour un vide grossier et d'une pompe cryogénique pour un vide plus poussé (pression résiduelle inférieure à 10^{-8} mbar). Le bâti est composé d'une enceinte de forme cylindrique (schéma en Figure 3.4(b)). Il dispose également d'un sas afin de rapidement transférer l'échantillon à revêtir dans le bâti de dépôt. Après ouverture de la vanne de transfert, l'échantillon est disposé dans son support via la canne de transfert. Le porte échantillon est équipé d'un mouvement de rotation afin de réaliser un dépôt à symétrie de révolution. Dans le bâti de dépôt sont installés un canon à ions de marque Veeco (3 cm Hallow Cathode Ion Gun), un neutraliseur (cf. paragraphe 3.1.1.2.1) et une microbalance à quartz pour contrôler l'épaisseur du dépôt. Les ions délivrés par le canon à ions sont principalement des ions Ar^+. La position de l'échantillon est fixe ; le choix du matériau à déposer se fait grâce à la rotation d'un porte-cible, situé sous le porte-échantillon, qui peut accueillir jusqu'à quatre cibles simultanément. On peut également choisir l'angle de la cible. La position de l'échantillon et du canon à ions étant fixe, cela permet à la fois de modifier l'orientation du cône d'émission du matériau pulvérisé, ainsi que l'angle d'attaque des ions sur la cible. L'optimisation de l'angle de la cible peut permettre la réduction de la rugosité des couches déposées.

On contrôle ici l'épaisseur de la couche déposée grâce à une microbalance à quartz : le quartz oscille à une fréquence fondamentale de 6 MHz. Lorsque la pulvérisation a lieu, des atomes se déposent également sur le quartz. Sa fréquence va alors être modifiée, et la variation de fréquence d'oscillation



(a) La machine de dépôt IBS



(b) Schéma de l'IBS

Figure 3.4 – Présentation de la machine de dépôt par pulvérisation ionique IBS.

donne une indication sur l'épaisseur de la couche de matériau déposée. On contrôle donc l'épaisseur à déposer en indiquant une fréquence désirée. Un autre mode de commande de dépôt est possible : on peut définir une durée de dépôt par matériau. Cela n'est cependant pertinent que lorsque la fréquence d'oscillation du quartz varie linéairement avec le temps de dépôt.

De manière analogue au dépôt sur le bâti MP800, il est nécessaire de réaliser une phase d'étalonnage en épaisseur afin de déterminer quelle est la relation pour chaque matériau entre la fréquence d'oscillation du quartz (ou la durée de dépôt) et l'épaisseur déposée. Cette étape de calibration est la même que celle décrite au paragraphe 3.1.1.1.2.

Un cache escamotable est disposé juste en dessous du porte-échantillon. Lorsqu'il est placé au dessus de l'échantillon, il peut servir à réaliser des prépulvérisations sans « polluer » l'échantillon.

3.1.2 Métrologie des revêtements multicouches

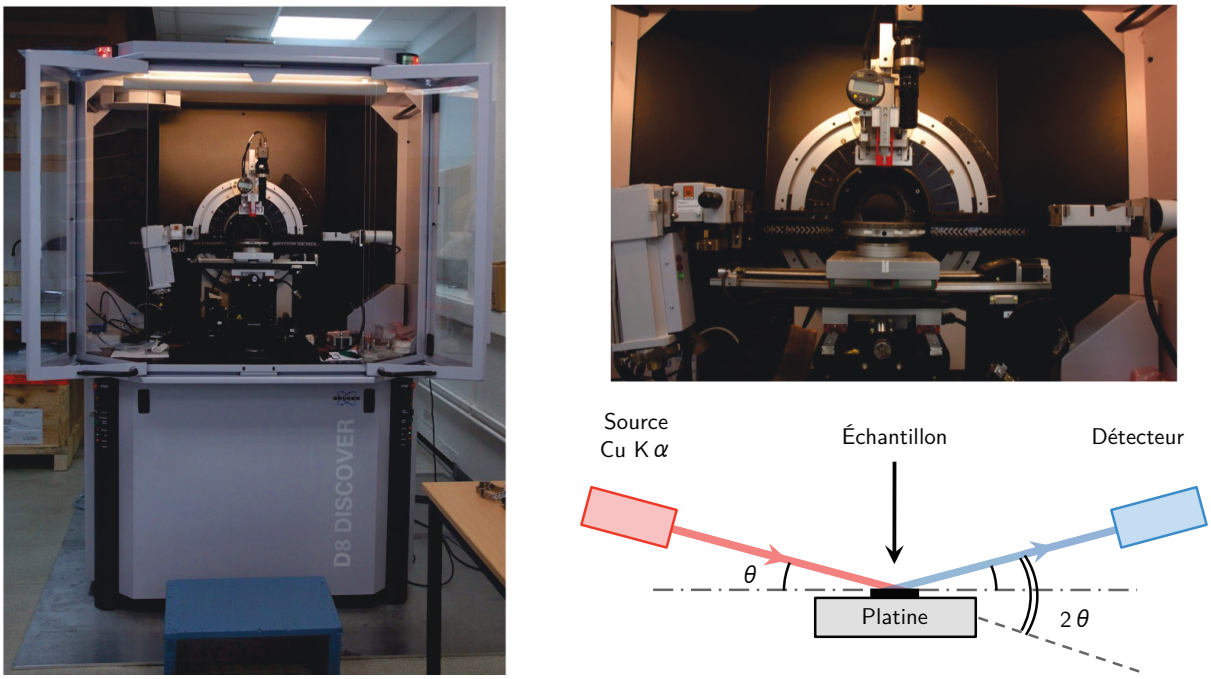
Parallèlement à la fabrication des couches minces, on a besoin de contrôler précisément ce qui a été déposé. Nous présentons dans cette section différents moyens de caractérisation des couches minces optiques.

3.1.2.1 Réflectométrie à rayons X

La principale méthode de caractérisation de couches minces est la réflectométrie à rayons X : le principe de cette méthode est la mesure de la réflectivité du revêtement dans la gamme spectrale des rayons X, en fonction de l'angle d'incidence à une longueur d'onde fixe, ou inversement en fonction de la longueur d'onde (ou de l'énergie de photon) à angle d'incidence fixe. La modélisation de la courbe mesurée va permettre de déduire la structure de l'échantillon déposé (épaisseurs des couches, rugosités, etc.). Durant ma thèse, j'ai eu l'occasion de réaliser de telles mesures sur le réflectomètre X rasant du laboratoire, ainsi que sur la branche XUV de la ligne de lumière Métrologie du synchrotron SOLEIL. Ces deux techniques de mesure sont détaillées dans la suite de cette section.

3.1.2.1.1 Réflectométrie en incidence rasante avec une source Cu Kα (Bruker D8 Discover)

Au LCF, nous disposons d'un réflectomètre X rasant de modèle D8 Discover, conçu par la société Bruker (voir Figure 3.5). Il permet de mesurer la réflectivité d'échantillons en fonction de l'angle de rasance, à une énergie de photon de l'ordre de 8048 eV (raie Kα du cuivre).



(a) Le réflectomètre X rasant (b) Détail et schéma de principe du réflectomètre

FIGURE 3.5 – Présentation du réflectomètre X rasant du laboratoire.

Il est composé d'une source X, d'un détecteur et d'une platine porte échantillon. Le tout est placé dans une cage protégeant l'utilisateur des radiations. La source est composée d'un tube à rayons X, composé d'un filament alimenté par une haute tension (40 kV ; courant de 40 mA) et d'une cible de cuivre. Du fait de la très forte différence de potentiel entre le filament (cathode) et la cible, des électrons sont accélérés et bombardés vers la cible. Plusieurs cas de figure se présentent alors : les électrons peuvent être ralentis et déviés par les noyaux des atomes de la cible, ce qui va produire un rayonnement continu (la décélération n'étant pas la même pour tous les électrons) ; ils peuvent également expulser des électrons de cœur d'atomes de la cible, qui vont alors être dans un état excité. La désexcitation de ces atomes va se faire via l'émission d'un photon. Le rayonnement émis par la source contient donc une composante continue, le rayonnement continu de freinage ou *Bremsstralung*, et des composantes discrètes : les raies d'émissions de la cible, ici du cuivre.

Un miroir de Göbel est placé à la suite du tube à rayons X. De forme parabolique, il permet à la fois de collimater le faisceau mais aussi son revêtement multicouche permet de sélectionner la raie Kα du cuivre (E=8048 eV, λ=0,154 nm). La raie Kβ n'est pas complètement annulée : son intensité est de l'ordre de 1/400 de celle de la raie Kα. Il peut donc arriver que cette raie fasse apparaître des pics légèrement visibles. Ces pics ne sont pas gênants en pratique car on peut très facilement les attribuer à la raie Kβ du cuivre. Il est possible de supprimer la contribution de la raie Kβ en insérant un filtre de Ni avant le détecteur mais cela se fait au détriment du rapport signal sur bruit. Des fentes peuvent être placées devant la source et/ou le détecteur afin de réduire la dispersion angulaire du faisceau. La

source et le détecteur sont montés chacun sur un bras équipé d'un moteur permettant d'obtenir une précision angulaire meilleure que 0,01°. Dans les conditions de mesures habituelles (en utilisant des fentes de 0,1 mm), le flux direct mesuré est de l'ordre de $15 \cdot 10^6$ coups par seconde. Pendant la mesure, l'échantillon est fixe, sa position ayant été réglée préalablement. La source se déplace pour éclairer l'échantillon avec un angle de rasance θ. Parallèlement, le détecteur se déplace de façon synchronisée pour récupérer le faisceau réfléchi par l'échantillon (angle 2θ par rapport au faisceau incident ; voir Figure 3.5(b)). Ce type de mesure est généralement désigné par « scan $\theta - 2\theta$ ». L'appareil est relié à un ordinateur permettant le contrôle des moteurs et l'acquisition des courbes de réflectivité mesurée en fonction de l'angle du détecteur.

3.1.2.1.2 Réflectométrie sur ligne de lumière synchrotron

Historiquement, le rayonnement synchrotron a été découvert grâce à l'observation de pertes d'énergie des électrons dans des anneaux de stockage. Il provient du rayonnement émis par une particule accélérée à une vitesse relativiste. En effet, il est bien connu qu'une particule chargée soumise à une accélération va émettre un rayonnement électromagnétique. Lorsque la vitesse de la particule est relativiste, le cône d'émission du rayonnement est très fin.

Dans la pratique, un synchrotron (représenté en Figure 3.6) est constitué d'un accélérateur, dans lequel vont être accélérés des électrons, qui vont ensuite graviter à une vitesse relativiste dans un anneau de stockage d'une centaine de mètres de diamètre. Le long de l'anneau, on trouve différents dispositifs magnétiques (aimants de courbure, onduleurs, wigglers) permettant d'orienter la trajectoire des électrons, et ainsi leur appliquer une accélération pour produire le rayonnement synchrotron. La lumière produite est collectée pour être envoyée et mise en forme dans différentes lignes de lumière.

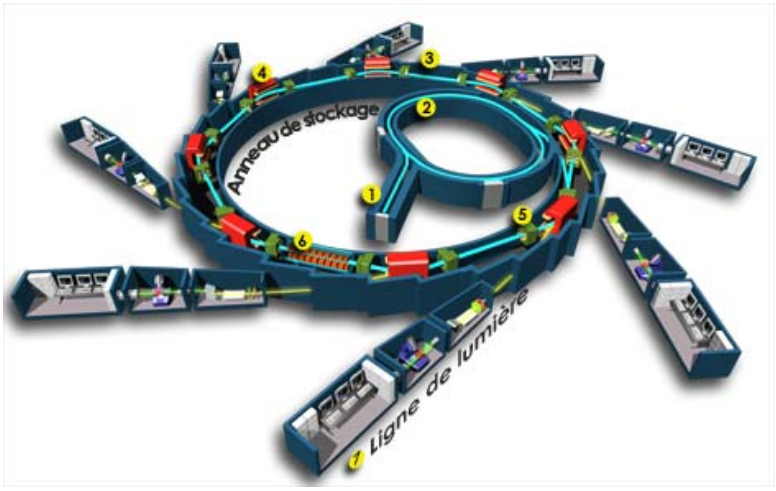


Figure 3.6 – Schéma de principe d'un synchrotron.
Source : site internet du synchrotron SOLEIL

Au synchrotron SOLEIL, les électrons dans l'anneau de stockage ont une énergie de 2,75 GeV. Il permet de produire de la lumière allant de 1 eV (infrarouge) à 50 keV (rayons X durs). Les performances radiométriques d'un synchrotron sont déterminées par sa brillance, ou flux de photons par unité d'angle solide, de surface transverse et de bande passante. Au synchrotron SOLEIL, elle atteint 10^{20} photons/s/mm^2/mrad^2/0,1% $\Delta\lambda/\lambda$.

Au cours de ma thèse, j'ai eu l'occasion de travailler sur la branche XUV de la ligne de lumière

Métrologie du synchrotron SOLEIL [Idir2006]. Cette branche couvre une gamme spectrale allant de 30 eV à 1800 eV. Elle est représentée en Figure 3.7.

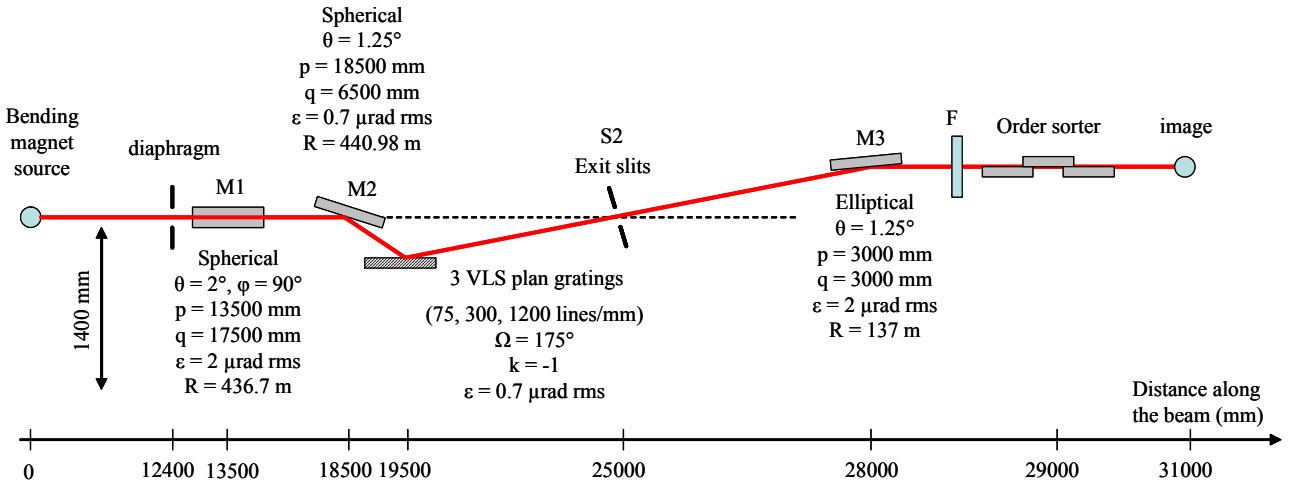


FIGURE 3.7 – Schéma de la branche XUV de la ligne Métrologie. *Source : site internet du synchrotron SOLEIL*

La ligne de lumière Métrologie est installée sur un aimant de courbure. Après un diaphragme au début de la branche XUV pour pouvoir obturer le faisceau, deux miroirs (M1 et M3 sur la Figure 3.7) permettent la focalisation respectivement horizontale et verticale du faisceau dans le plan image, situé à 31 m de la source. Entre ces deux miroirs est inséré un monochromateur, composé d'un miroir sphérique, d'un réseau plan *« Variable Line Spacing » ou VLS (réseau à pas variable)* et d'une fente de sortie. Le réseau VLS est composé de trois réseaux, dont le choix détermine la gamme spectrale d'utilisation (75 traits/mm pour 45–600 eV ; 300 traits/mm pour 300–1600 eV ; 1200 traits/mm pour 600 eV–1,8 keV). À la suite du réseau plan VLS est placée la fente de sortie, dont on peut choisir la largeur pour régler la finesse spectrale : plus la fente est fermée, meilleure sera la résolution spectrale, mais au détriment du flux. Après le miroir de focalisation verticale, le coupeur d'ordre permet d'éliminer les harmoniques d'ordre élevé pour ne garder que la composante souhaitée. Pour cela, il est composé d'un jeu de filtres en transmission et d'un filtre basse-bas en énergie, contenant trois miroirs plan. Le filtre peut être choisi en fonction de la gamme d'énergie de travail (parmi lesquels des filtres de bore, carbone, titane). De même, on peut choisir l'ensemble de trois miroirs (revêtement et angle).

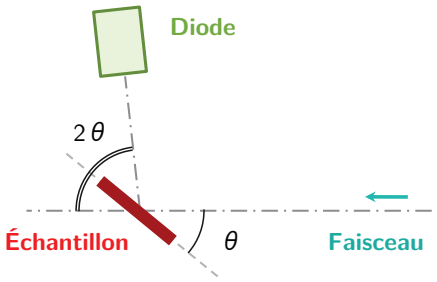
À la suite de ces différentes étapes de mise en forme spatiale et spectrale du faisceau est placé le réflectomètre (voir Figure 3.8) : situé dans une enceinte cylindrique sous vide cryogénique, il est composé d'une platine porte-échantillon motorisée (translations x, y et z plus une rotation), et d'un bras « détecteur » orientable. Il est possible de choisir le détecteur à utiliser : une photodiode nue, une photodiode en silicium revêtue aluminium ou une photodiode en silicium revêtue zirconium. Le courant de la photodiode est mesuré grâce à un électromètre Keithley 6517B ; c'est la grandeur qui nous permettra de mesurer des réflectivités. Il est également possible d'utiliser une fente à placer devant la diode utilisée.

Le dispositif de métrologie de la branche XUV permet donc de réaliser des mesures de réflectivité de miroirs via des mesures $\theta - 2\theta$, comme décrit au paragraphe 3.1.2.1.1. Ici, la position du faisceau est fixe. Pour faire la mesure $\theta - 2\theta$, on tourne donc l'échantillon d'un angle θ et on mesure le courant du détecteur, tourné d'un angle 2θ (voir Figure 3.9(a)).

Afin de normaliser la mesure et calculer la réflectivité de l'échantillon étudié, on doit aussi mesurer

Figure 3.8 – Vue de l'intérieur du réflectomètre de la branche XUV de la ligne Métrologie à SOLEIL

le courant du faisceau direct : pour cela, on ôte l'échantillon du trajet du faisceau et on place la diode en face du faisceau (Figure 3.9(b)) pour acquérir le courant de la diode en fonction du temps. Suivant l'échantillon à analyser, les mesures dans la gamme XUV peuvent donner accès à de faibles valeurs de courant ; il est donc également nécessaire de tenir compte du bruit dans le calcul de la réflectivité. Pour cela, on va donc mesurer le bruit de la mesure du faisceau direct ainsi que le bruit de la mesure $\theta - 2\theta$, en utilisant les mêmes dispositions qu'en Figure 3.9(b) et 3.9(a), mais en fermant l'obturateur pour masquer le faisceau et ne mesurer que le signal parasite.



(a) Schéma de l'acquisition d'une mesure

(b) Schéma de l'acquisition d'un faisceau direct

Figure 3.9 – Principe des mesures sur ligne de lumière synchrotron

Ainsi, en notant I_{mesure} et I_{direct} respectivement le courant de la mesure et le courant du faisceau direct, et en notant b_{mesure} et b_{direct} respectivement le courant du bruit de mesure et le courant du bruit du faisceau direct, la réflectivité $R_{échantillon}$ de l'échantillon étudié sera donc :

$$R_{échantillon} = \frac{I_{mesure} - b_{mesure}}{I_{direct} - b_{direct}} \tag{3.1}$$

Dans le cas d'une mesure $\theta - 2\theta$, I_{direct} et b_{direct} correspondent aux moyennes temporelles des courants mesurés.

En plus des mesures $\theta - 2\theta$ décrites précédemment, il est également possible de réaliser des mesures à angle d'incidence fixe en faisant varier l'énergie des photons incidents. L'échantillon est alors tourné d'un certain angle θ, et le détecteur placé à la position 2θ correspondante. On acquiert ainsi le courant

de la photodiode en variant uniquement l'énergie des photons incidents. Ici, pour normaliser la mesure, on acquiert un faisceau direct (Figure 3.9(b)) en faisant varier l'énergie dans la gamme spectrale de la mesure. De manière analogue à précédemment, on mesure aussi les bruits : moyenne temporelle pour le bruit de la mesure (le détecteur étant placé à une position 2θ fixe avec l'obturateur fermé) et le bruit du faisceau direct (détecteur en face du faisceau et obturateur fermé). La même formule que précédemment s'applique pour le calcul de la réflectivité de l'échantillon en fonction de l'énergie de photons.

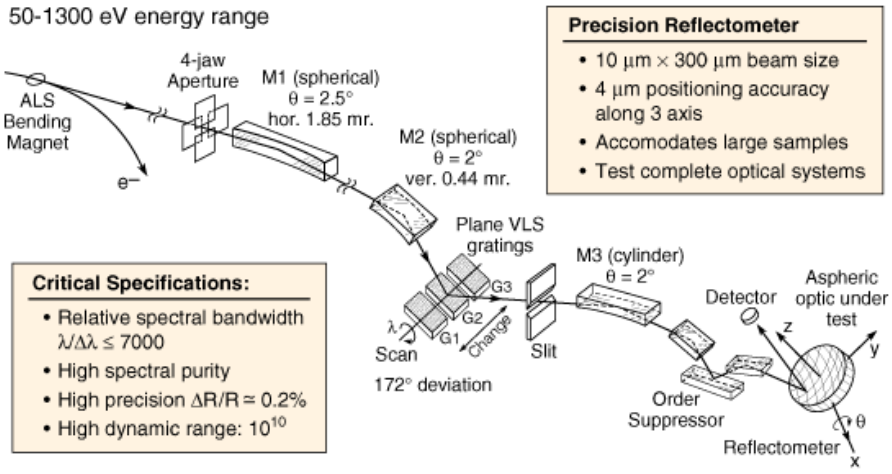


FIGURE 3.10 – Schéma de la ligne de lumière 6.3.2 de l'*Advanced Light Source* (ALS). *Source : site internet du CXRO (Center for X-Ray Optics)*

Dans le cadre d'une étude de revêtements multicouches que j'ai effectuée pendant ma thèse, certaines mesures ont également été faites sur la ligne de lumière 6.3.2 (ligne dédiée à la métrologie) du synchrotron ALS (Berkeley, Californie). La ligne de lumière est schématisée en Figure 3.10. Son fonctionnement est tout à fait analogue à celui de la branche XUV de la ligne Métrologie de SOLEIL. Elle est décrite en références [Underwood1998] et [Gullikson2001]. Il a été déterminé (voir [Soufli2012]) que la diffusion sur le réseau à 1200 lignes/mm du monochromateur de la ligne 6.3.2 de l'ALS était responsable de pertes sur le spéculaire à hauteur de 2% en valeur relative. Cette correction a été effectuée pour les scans en énergie effectués à l'ALS.

3.1.2.1.3 Analyse des résultats

L'analyse des résultats des mesures de réflectivité X va nous permettre de modéliser l'échantillon étudié. En effet, en simulant un modèle dans les conditions des mesures, et en comparant le résultat de la simulation aux mesures effectuées, on peut ajuster le modèle initial de manière à ce que la simulation soit en adéquation avec les mesures.

L'analyse des résultats des mesures à 8 keV sur le réflectomètre D8 Discover a été faite grâce au logiciel Leptos (logiciel commercial de la société Bruker, fourni avec le réflectomètre). Nous avons notamment utilisé l'algorithme génétique pour l'ajustement de la simulation à la mesure.

Pour analyser les mesures effectuées sur synchrotron, nous avons utilisé le logiciel IMD [Windt1998] (voir Figure 3.11). Ce logiciel permet la simulation de revêtements multicouches en se basant sur les constantes optiques tabulées (CXRO). Il est également possible de définir un matériau via les facteurs de diffusion atomique en indiquant une composition chimique et une densité. Le logiciel IMD permet également une modélisation du comportement des couches aux interfaces grâce par exemple à

plusieurs modèles de rugosité. Il est également possible de simuler le phénomène d'interdiffusion entre deux couches, grâce au modèle « graded interface ». Ce modèle propose d'introduire une ou plusieurs couches à l'interface entre les deux matériaux afin de simuler un gradient d'indice. Les constantes optiques de chaque couche d'interface seront la moyenne pondérée des constantes optiques des couches principales.

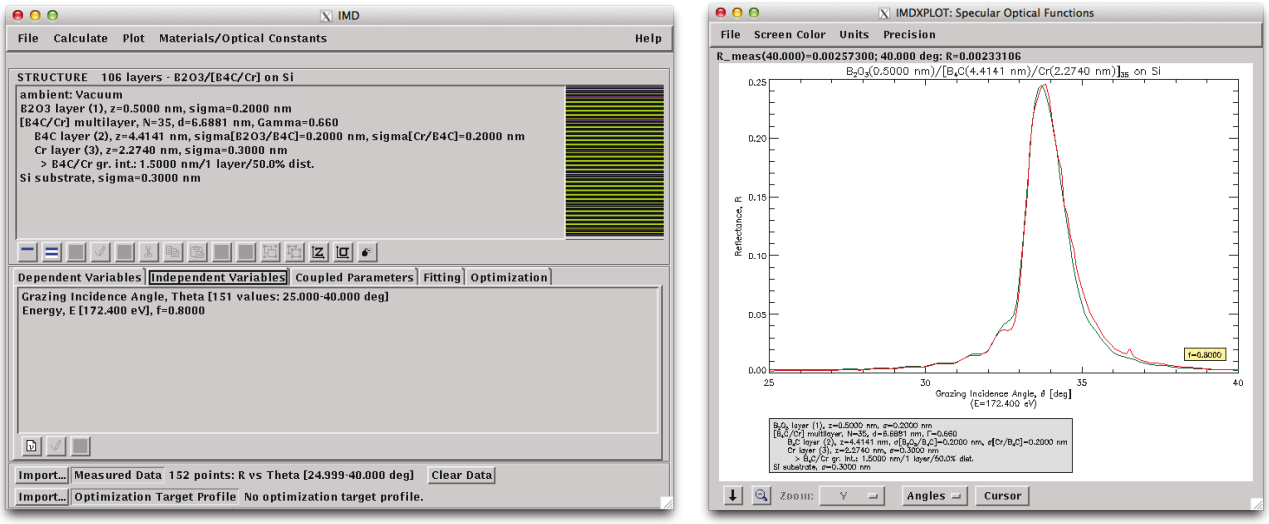


Figure 3.11 – Interface graphique du logiciel IMD et un exemple de courbe de réflectivité simulée.

Le réflectomètre X rasant étant à disposition au laboratoire, la première étape de la métrologie d'un revêtement est effectuée à 8 keV sur l'appareil Discover D8. Un premier ajustement du modèle de l'échantillon est donc fait, en prenant comme point de départ les épaisseurs que l'on visait pour l'échantillon. La mesure est généralement effectuée pour des angles très rasants, typiquement entre 0° et 10° de rasance. On détecte donc bien l'angle critique de l'échantillon, puis différents pics de Bragg suivant la composition et la qualité du revêtement multicouche. Pour l'ajustement de la simulation aux mesures, il faut porter une attention particulière à la position de l'angle critique et à la position et la hauteur des différents pics de Bragg (les positions des pics de Bragg de la simulation sont ajustables en modifiant la période du revêtement ; les hauteurs des pics de Bragg évoluent en fonction des rugosités et des épaisseurs relatives des matériaux qui composent la multicouche). Ce premier ajustement du modèle est effectué grâce au logiciel Leptos.

Une fois qu'un modèle s'approchant bien de la mesure à 8 keV a été obtenu, on peut mesurer l'échantillon sur ligne de lumière synchrotron afin de confirmer le modèle obtenu, voire essayer d'acquérir des informations supplémentaires. L'ajustement des mesures synchrotron se fait de la façon suivante. Dans un premier temps, on simule l'échantillon dans les conditions de mesure (angles d'incidence, énergies) avec le modèle qu'on a obtenu via la mesure à 8 keV. Le cas échéant, on peut avoir besoin de retoucher ce modèle afin de simuler correctement à la fois les mesures à 8 keV et les mesures synchrotron avec le même modèle. Pour cela, on procède par itérations entre les différentes mesures. Les paramètres du modèle (épaisseurs, rugosités aux interfaces, éventuellement densité du matériau, ajout d'une « couche d'interface » pour simuler l'interdiffusion) sont ajustés manuellement à chaque étape : d'abord pour coller au mieux aux mesures synchrotron, puis le nouveau modèle est simulé à 8 keV et ajusté en cas de besoin.

Un schéma synthétique de la procédure d'analyse des courbes de réflectivité est représenté en Figure 3.12.

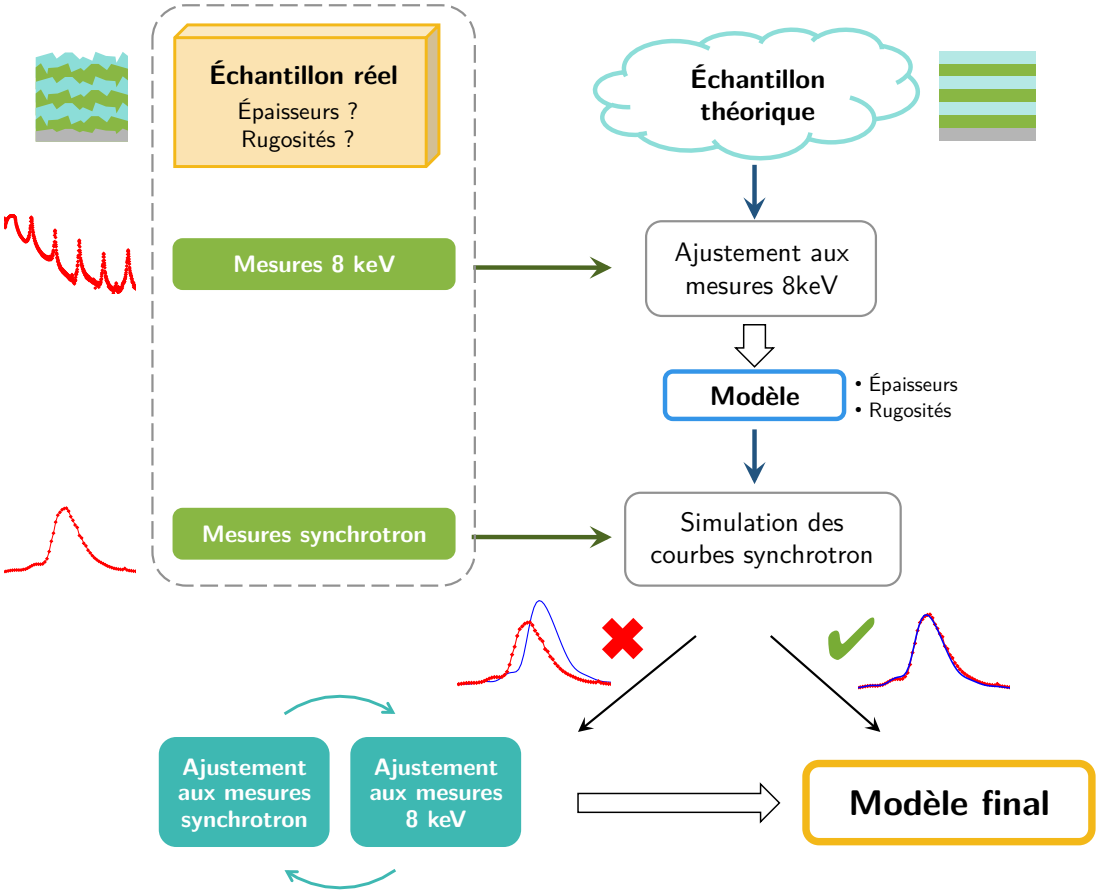


FIGURE 3.12 – Schéma simplifié de la démarche d'analyse des courbes de réflectivité.

Dans certains cas, plusieurs types de mesures sur synchrotron ont été faites (mesures en angles à différentes énergies, en plus de mesures à angle fixe en fonction de l'énergie). Il est alors plus difficile de trouver un modèle commun qui convienne simultanément pour toutes les mesures effectuées. C'est d'autant plus difficile pour les mesures synchrotron pour lesquelles l'angle de mesure peut être est très proche de l'incidence normale, ou pour des énergies de mesure proche d'un seuil d'absorption d'un des matériau de la multicouche étudiée. En effet, dans le premier cas, la réflectivité va davantage dépendre de la rugosité qu'à 8 keV, où l'échantillon est étudié en incidence rasante. Dans le second cas, la réflectivité simulée peut être erronée si les constantes optiques ne sont pas très bien connues proches du seuil d'absorption du matériau. Dans ces deux cas, il peut arriver soit de garder deux modèles distincts pour modéliser l'échantillon (un fonctionnant à 8 keV, l'autre pour les mesures proches incidence normale), soit de choisir de ne pas tenter d'adapter le modèle aux mesures problématiques (... en attendant de mesurer les véritables constantes optiques du matériau proches du seuil).

3.1.2.2 Microscopie électronique

La microscopie électronique est un type de microscopie dans lequel un faisceau d'électrons illumine un échantillon pour en faire une image. La longueur d'onde de De Broglie de électrons étant très courte, la microscopie électronique permet d'obtenir de très hautes résolutions, bien meilleures qu'en microscopie photonique, permettant par exemple de résoudre des atomes de silicium. Différentes techniques de microscopie électronique existent, parmi lesquelles la microscopie électronique en transmission (TEM, *Transmission Electron Microscopy*), la microscopie électronique en réflexion

ou la microscopie électronique à balayage en transmission (STEM, Scanning Transmission Electron Microscopy).

Pour l'étude de multicouches Cr/B_4C (détaillée à la section 3.2) menée pendant ma thèse, les mesures en microscopie électronique ont été effectuées chez EAG Labs (Sunnyvale, Californie). Les images TEM ont été réalisées avec un instrument Tecnai TF20 de la société FEI, qui permet d'obtenir une résolution spatiale de 0,2 nm.

Dans le cadre de l'analyse de revêtements multicouches, on peut vouloir utiliser la microscopie électronique pour visualiser une section transverse de l'échantillon, et donc observer l'alternance des couches, par exemple pour la mesure directe de leur épaisseur. Les échantillons à observer doivent tout d'abord être préparés de manière à en obtenir une section. Il faut donc pour ces échantillons que les revêtements multicouches aient été déposés sur un substrat pouvant être découpé (typiquement un wafer de silicium). Une couche protectrice d'environ 2 μm de platine est déposée sur l'échantillon. Les sections sont ensuite préparées par sonde ionique focalisée (FIB, *Focused Ion Beam*). Les images en champ brillant ont été faites en utilisant l'ordre central de diffraction uniquement. Les images à haute résolution utilisent tous les ordres de diffraction.

Des mesures STEM ont également été réalisées en utilisant la méthode de « champ sombre annulaire », ou « High Angle Annular Dark-Field imaging » (HAADF). De cette façon, le détecteur collecte les électrons fortement diffusés dans un anneau autour du faisceau d'illumination. Ces électrons diffusés à un angle élevé correspondent à de la diffusion de Rutherford, pour laquelle la section efficace différentielle de diffusion est proportionnelle au carré du numéro atomique Z. Ce dispositif permet donc de visualiser le contraste de Z des éléments composant l'échantillon. Contrairement aux images TEM, les matériaux à Z élevés apparaissent donc clairs sur les images STEM, alors que les matériaux à faible Z apparaissent sombres.

3.1.2.3 Microscopie à force atomique

La microscopie à forme atomique (AFM, *Atomic Force Microscopy*) est une technique de microscopie en champ proche permettant la mesure de la topographie d'une surface. Elle est basée sur le principe suivant : on vient placer l'extrémité (ou *apex*) d'une pointe très proche de la surface étudiée. La pointe balaye la zone de l'échantillon à analyser pour en faire une image. La pointe est fixée à l'extrémité d'un « levier » flexible, dont on mesure la déformation, en général grâce à un laser éclairant l'extrémité du levier, ce qui permet de déduire le parcours de la pointe donc donne accès au relief de la surface. L'apex de la pointe étant très fin (idéalement, un atome unique), la technique de microscopie à force atomique utilise les interactions d'attraction et répulsion entre les atomes de l'extrémité de la pointe et ceux de la surface, afin de détecter le relief de la surface sans l'endommager ni endommager la pointe. Ainsi, il existe trois modes de fonctionnement :

— le mode contact : la pointe et l'échantillon sont en contact permanent. Dans ce régime, les forces répulsives dominent, ce qui va dévier le levier. On va donc mesurer la direction de la déviation du levier ;

— le mode « tapping », ou intermittent : la pointe oscille à une fréquence proche de la fréquence de résonance du levier. La pointe entre en contact avec la surface de l'échantillon de manière intermittente à chaque oscillation. L'amplitude de l'oscillation varie avec le relief de la surface ; la mesure de l'amplitude d'oscillation du levier permet donc l'accès à la topographie de la surface ;

— le mode non contact : la pointe oscille à une fréquence proche de la fréquence de résonance du

levier, au dessus de la surface. La pointe et la surface ne sont jamais en contact. Dans ce régime d'utilisation, ce sont les forces attractives qui dominent.

Dans le cadre de l'analyse de revêtements multicouches, l'utilisation d'un microscope à force atomique peut permettre de mesurer la rugosité de surface d'un échantillon. Cette mesure pourra ensuite être comparée aux valeurs de rugosité utilisées dans les modèles obtenus à partir des mesures de réflectivité X.

Dans le cadre de ma thèse, nous avons pu bénéficier de mesures réalisées sur le microscope à force atomique du synchrotron SOLEIL. Il s'agit d'un modèle NX20, de la société Park Company. Ce modèle utilise des pointes AC160 TS (Olympus). Il a été utilisé en mode intermittent.

3.2 Étude de revêtements multicouches en Cr/B_4 C

3.2.1 Présentation de l'étude

3.2.1.1 Contexte

Avec cette étude, nous avons pu étudier en détail les interfaces entre Cr et B_4C, et plus particulièrement pour de très fines épaisseurs des couches. Mieux connaître le comportement de ces deux matériaux aux interfaces est d'autant plus intéressant que le B_4C peut être utilisé comme barrière de diffusion pour augmenter la réflectivité de revêtements multicouches, notamment pour des multicouches Cr/Sc pour la fenêtre de l'eau.

Cette étude a été également l'occasion de comparer les performances des deux machines de dépôt de revêtement multicouches disponibles au laboratoire (MP800 et IBS) ; certains échantillons ont en effet été déposés par pulvérisation cathodique, d'autres par pulvérisation ionique.

3.2.1.2 Liste des échantillons déposés et paramètres utilisés

Différents échantillons Cr/B_4C ont été déposés par pulvérisation ionique (échantillons « IO ») et par pulvérisation cathodique magnétron (échantillons « MP »). La liste et la composition des échantillons étudiés est détaillée dans la Table 3.1.

Pour la suite de cette étude, l'accent a été mis sur six échantillons en particulier : MP14030, MP14031, MP14032, IO1409, IO1414 et IO1415. Les différents échantillons fabriqués avec le bâti IBS ont été déposés en utilisant le contrôle des épaisseurs en temps et non en fréquence. Les échantillons MP ont été déposés à une pression d'argon de 0,7 mTorr. Le B_4C a été déposé en mode RF (puissance 150 W) et le Cr en mode DC (courant de 50 mA).

Les échantillons étudiés ont des périodes, un nombre de périodes et des substrats différents (wafer de silicium pour les échantillons déposés en pulvérisation cathodique, et *float glass* pour les échantillons déposés en pulvérisation ionique).

Pour tous les échantillons, le dépôt Cr/B_4C commence par une couche de chrome directement sur le substrat puis est suivie d'une couche de B_4C. Pour certains échantillons, une couche protectrice en B_4C a été ajoutée au dessus du dépôt afin de limiter l'oxydation de la multicouche. Cette couche protectrice est indiquée par la mention « *cap* » (« capping layer »).

La réflectivité de ces échantillons a été mesurée par réflectométrie X rasant à 8 keV puis sur la branche XUV de la ligne Métrologie du synchrotron SOLEIL. Les mesures ont ensuite été simulées et le modèle a été optimisé de manière à ce qu'il soit cohérent entre les différents échantillons et le plus

Table 3.1 – Liste des échantillons Cr/B_4C étudiés et leurs épaisseurs visées (FG : Float Glass).

Nom de l'échantillon	Substrat	Nombre de périodes	Période	Cr	B_4C	B_4C cap
MP14030	Si	10	7,9 nm	2,5 nm	5,4 nm	-
MP14031	Si	35	7,9 nm	2,5 nm	5,4 nm	-
MP14032	Si	35	3,58 nm	2,5 nm	1,08 nm	-
MP14033	Si	35	4,21 nm	0,97 nm	3,24 nm	-
IO1409	FG	10	6,18 nm	2,82 nm	3,36 nm	-
IO1410	FG	10	3,94 nm	2,82 nm	1,12 nm	-
IO1411	FG	10	4,31 nm	0,95 nm	3,36 nm	-
IO1412	FG	10	2,12 nm	0,92 nm	1,20 nm	-
IO1413	FG	50	2,12 nm	0,92 nm	1,20 nm	2,17 nm
IO1414	FG	35	3,07 nm	1,87 nm	1,2 nm	1,87 nm
IO1415	FG	35	2,59 nm	1,87 nm	0,72 nm	2,35 nm
IO1416	FG	35	3,30 nm	0,92 nm	2,38 nm	1,10 nm
IO1417	FG	35	2,89 nm	0,51 nm	2,38 nm	110 nm

proche possible des mesures. Pour cela, plusieurs modèles ont été utilisés (détaillés dans la suite de cette section) suivant les épaisseurs des couches, notamment en introduisant une couche d'interface IL-1 à l'interface B_4C-sur-Cr, et une couche d'interface « à composition modifiée » IL-2. Les couches IL-1 et IL-2 sont simulées par une couche dont les constantes optiques sont la moyenne pondérée des constantes optiques du Cr et du B_4C, avec un rapport respectivement de 50/50 et 70/30. Les indices utilisés pour les différents matériaux aux différentes énergies de mesures sont regroupés dans la Table 3.2. Pour le chrome et l'oxyde de bore, les constantes optiques utilisées correspondent aux tables d'indice de Henke [Henke1993]. Pour le carbure de bore, les constantes optiques utilisées sont celles mesurées par R. Soufli et collègues [Soufli2008].

Table 3.2 – Constantes optiques des matériaux utilisées pour les simulations.

Matériau	8052 eV		170 eV		172,4 eV	
	δ	β	δ	β	δ	β
Cr	$2{,}116\times10^{-5}$	$2{,}162\times10^{-6}$	0,02460	0,01065	0,02405	0,01026
B_4C [Soufli2008]	$6{,}93\times10^{-6}$	$9{,}27\times10^{-9}$	0,006883	0,0008266	0,006371	0,0007892
IL-1	$1{,}404\times10^{-5}$	$1{,}084\times10^{-6}$	0,01574	0,005739	0,01521	0,005523
IL-2	$1{,}702\times10^{-5}$	$1{,}536\times10^{-6}$	-	-	-	-
B_2O_3	$7{,}733\times10^{-6}$	$2{,}506\times10^{-8}$	0,01160	0,002321	0,01114	0,002221

3.2.2 Analyse en réflectivité des échantillons

3.2.2.1 Mesure de la réflectivité en incidence rasante à 8 keV

La mesure des échantillons à 8 keV permet de donner accès aux épaisseurs effectivement déposées avec une bonne précision. Les courbes mesurées à 8 keV pour quelques échantillons (MP14031, MP14032 et IO1414), ainsi que les simulations associées sont données en Figure 3.13.

La Figure 3.13 représente la réflectivité mesurée à 8 keV en fonction de l'angle de rasance pour dif-

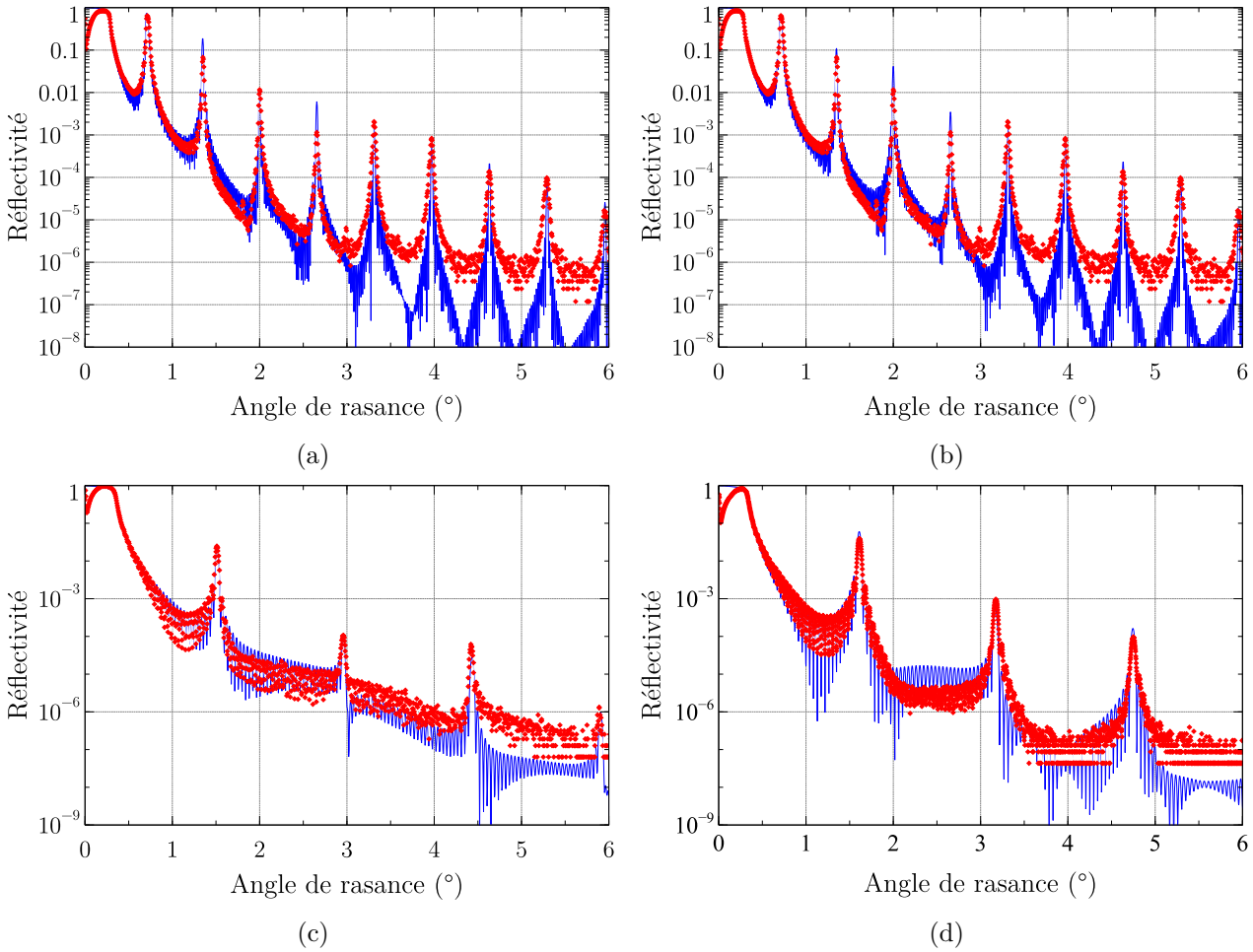


FIGURE 3.13 – Courbes de réflectivité mesurée et simulée en réflectométrie X rasants à 8 keV, pour l'échantillon MP14031 avec (a) un modèle à 2 couches (Cr/B_4C), (b) un modèle à trois couches (Cr/IL-1/B_4C), (c) l'échantillon MP14032 avec un modèle à 2 couches (Cr/IL-2) et (d) l'échantillon IO1414 avec un modèle à 3 couches (Cr/IL-1/B_4C). Les points en rouge représentent la réflectivité mesurée et les traits bleu la réflectivité simulée.

férents échantillons (MP14031, MP14032 et IO1414). La courbe de réflectivité mesurée pour MP14031 (Figure 3.13(a)) montre un grand nombre de pics de Bragg (jusqu'à l'ordre 9). Pour les pics d'ordre élevé, on remarque un léger élargissement. Celui-ci peut être dû à un léger décalage de la période de la multicouche survenant au cours du dépôt. Par simulation, ce décalage est estimé à 2,5 pm par période. On voit également sur la Figure 3.13(a) la présence de petits pics vers 1,8° et 3°. Ces pics correspondent aux pics de Bragg d'ordre 3 et 5 pour la raie K-β du cuivre, qui n'est pas parfaitement filtrée par le miroir Göbel (voir paragraphe 3.1.2.1.1).

Sur ces courbes sont également tracées les simulations de ces échantillons. Les paramètres utilisés pour les simulations (épaisseurs et rugosités) sont regroupés dans la Table 3.3.

Pour l'échantillon MP14031, on voit dans la Table 3.3 que les interfaces de la multicouche sont très asymétriques pour le modèle simple à deux couches (Cr/B_4C). La valeur simulée de la rugosité à l'interface B_4C-sur-Cr est en effet plutôt élevée (0,6 nm), alors que l'autre interface est plus lisse (rugosité de 0,2 nm). Cette asymétrie peut s'expliquer par un phénomène d'interdiffusion à l'interface B_4C-sur-Cr. Nous avons donc également simulé cet échantillon en utilisant le modèle « graded interface » du logiciel IMD pour cette interface. Comme décrit au paragraphe 3.1.2.1.3, ce modèle

Table 3.3 – Paramètres des multicouches utilisés pour les simulations ; unités : nm ; Ép. = épaisseur, σ = rugosité, c. = couches, cap = *capping layer* (couche de protection)

Échantillon	Période (nm)	Cr (nm)		IL (nm)		B_4C (nm)		B_4C cap (nm)		B_2O_3 (nm)	
		Ép.	σ	Ép.	σ	Ép.	σ	Ép.	σ	Ép.	σ
MP14031 2 c.	6,69	2,14	0,6	–	–	4,55	0,2	-	-	0,5	0,2
MP14031 3 c.	6,69	1,52	0,3	1,5	0,3	3,66	0,2	-	-	0,5	0,2
MP14030	6,8	1,63	0,4	1,5	0,4	3,67	0,2	-	-	0,5	0,2
MP14032	3	1,35	0,3	1,65	0,23	–	–	-	-	1,5	0,2
IO1409	5,92	2,47	0,4	1,1	0,4	2,35	0,27	1,7	0,3	0,6	0,25
IO1414	2,8	1,36	0,25	1,2	0,25	0,24	0,25	0,95	0,25	0,6	0,25
IO1415	2,37	1,28	0,35	1,09	0,28	–	–	0,9	0,3	0,6	0,3

introduit une « couche d'interface » notée IL-1 entre la couche de Cr et la couche de B_4C (voir Figure 3.14(a)). Il simule donc un revêtement multicouche périodique composé de trois couches par période : une première couche de Cr, suivie de la couche d'interface IL-1, puis de la couche de B_4C. La couche d'interface IL-1 est simulée par une couche dont les constantes optiques sont la moyenne de celles du Cr et du B_4C (voir Table 3.2).

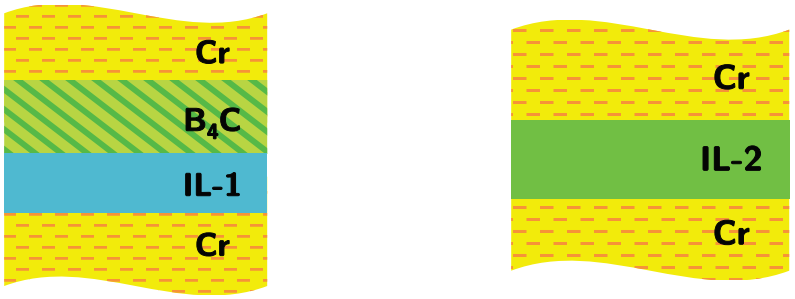


Figure 3.14 – Schéma des modèles utilisés : (a) modèle à trois couches Cr/IL-1/B_4C et (b) modèle à deux couches Cr/IL-2.

Les résultats des simulations de l'échantillon MP14031 pour les deux modèles sont montrés en Figure 3.13(a) et 3.13(b). La Figure 3.13(a) montre les résultats de la simulation avec le modèle simple à deux couches (Cr/B_4C). On peut voir que pour ce modèle, la hauteur des deuxième et quatrième pics de Bragg n'est pas bien représentée. La hauteur de ces pics de Bragg est mieux décrite avec le modèle à trois couches (Cr/IL-1/B_4C) tenant compte de l'interdiffusion à l'interface B_4C-sur-Cr (voir Figure 3.13(b)).

Pour cette raison, les autres échantillons ont donc également été simulés en utilisant la couche d'interface. Les deux échantillons MP14032 et IO1415, ayant une couche de B_4C très fine, ont été simulés avec un modèle à deux couches Cr/IL-2 (voir la courbe pour MP14032 en Figure 3.13(c)). La couche IL-2 a une composition légèrement différente de IL-1 : on considère que le B_4C présent dans la multicouche a été entièrement consommé pour former la couche IL-2 ; le Cr est donc déposé directement sur une couche d'interface (voir Figure 3.14(b)), et IL-2 contiendra plus de Cr que IL-1 (voir section 3.2.1.2 et Table 3.2).

Comme on peut le voir sur la Table 3.3, la couche d'interface est présente pour tous les échantillons,

et ce, quelle que soit la technique de dépôt. On remarque néanmoins qu'elle semble légèrement plus fine pour les échantillons déposés par pulvérisation ionique (de l'ordre de 1 nm) que pour les échantillons déposés en pulvérisation cathodique (de l'ordre de 1,5 nm).

Parallèlement, les résultats montrent que l'épaisseur de la couche d'interface ne varie pas ou peu avec le nombre de périodes : ceci est visible pour les échantillon déposés en pulvérisation cathodique MP14031 (35 périodes) et MP14030 (10 périodes), mais aussi pour les échantillons déposés en pulvérisation ionique IO1409 (10 périodes) et IO1414 (35 périodes). Le phénomène d'interdiffusion semble donc ne pas varier beaucoup pendant le dépôt (en pulvérisation cathodique ou ionique).

On peut comparer les épaisseurs visées aux épaisseurs estimées par les simulations (voir Tables 3.1 et 3.3). Ceci nous enseigne que pour les échantillons MP environ 1,7 nm de B_4C participe à la formation de la couche d'interface, contre environ 1 nm pour les échantillons IO. On s'attend donc à ce que pour les échantillons dont l'épaisseur de B_4C est inférieure à 1,7 nm (pour les échantillons MP) ou 1 nm (pour les échantillons IO), le B_4C déposé soit entièrement consommé dans la couche d'interface. Ceci est bien le cas pour l'échantillon MP14032, dont l'épaisseur visée de B_4C était de 1,08 nm, et pour l'échantillon IO1415, dont l'épaisseur de B_4C visée était de 0,72 nm. Ceci est donc bien cohérent avec le fait que pour ces deux échantillons, on retrouve un modèle à deux couches Cr/IL, sans B_4C pur. Par ailleurs, ceci indiquerait qu'il n'y a pas suffisamment de B_4C pour former une couche d'interface IL-1. Il serait donc logique d'utiliser une couche d'interface à composition modifiée (IL-2), dont la proportion de Cr est plus importante.

Les résultats précédents semblent indiquer que, pour les échantillons MP, la quantité de B_4C dépensée pour former la couche d'interface est plus épaisse d'environ 1 nm que pour les échantillons IO. Les deux techniques de dépôt peuvent peut-être induire des propriétés légèrement différentes pour un ou les deux matériau(x), telles que la densité, la stœchiométrie ou la cristallinité. On peut également supposer que les effets de mélange entre les deux matériaux aux interfaces peuvent être différents entre les deux techniques de dépôt. Néanmoins, il semble dans les deux cas que l'épaisseur de la couche d'interface soit proche de l'épaisseur de B_4C utilisée pour former la couche IL.

Pour tous les échantillons étudiés, la dernière couche, au contact de l'air, est une couche de B_4C. Excepté pour l'échantillon MP14032, l'épaisseur de cette couche vaut au moins 3 nm pour tous les échantillons. Il a été montré que cette dernière couche de B_4C s'oxyde au contact de l'air [Soufli2008]. Afin de simuler l'oxydation de la dernière couche de B_4C, la partie supérieure de la multicouche a été modélisée par une couche de B_2O_3 disposée sur la dernière couche de B_4C. L'épaisseur de la couche de B_2O_3 a été calculée de sorte à approcher le plus possible la simulation de la mesure. On remarque que pour tous les échantillons sauf MP14032, l'épaisseur de la couche d'oxyde est de l'ordre de 0,5–0,6 nm.

Pour l'échantillon MP14032 en revanche, on note que la couche d'oxyde simulée est plus épaisse que pour les autres échantillons : de l'ordre de 1,5 nm d'épaisseur. Une explication à ce phénomène pourrait être le fait que la dernière couche pour cet échantillon est la couche « d'interface » IL-2, et non une couche de B_4C.

3.2.2.2 Mesure de la réflectivité à basse énergie

Les trois échantillons ayant les périodes les plus épaisses ont été ensuite mesurés sur synchrotron (MP14031, MP14030 et IO1409). Des mesures de type θ–2θ ont été faites pour une énergie de photon autour de 170 eV, soit juste en dessous du seuil d'absorption K du bore (188 eV). En effet, cette énergie de mesure a été choisie car elle permet de maximiser la réflectivité des multicouches, qui contiennent

du bore. Les autres échantillons de l'étude en cours n'ont pu être mesurés à cette énergie car leur période était trop courte. Les résultats de ces mesures sont tracés en Figure 3.15.

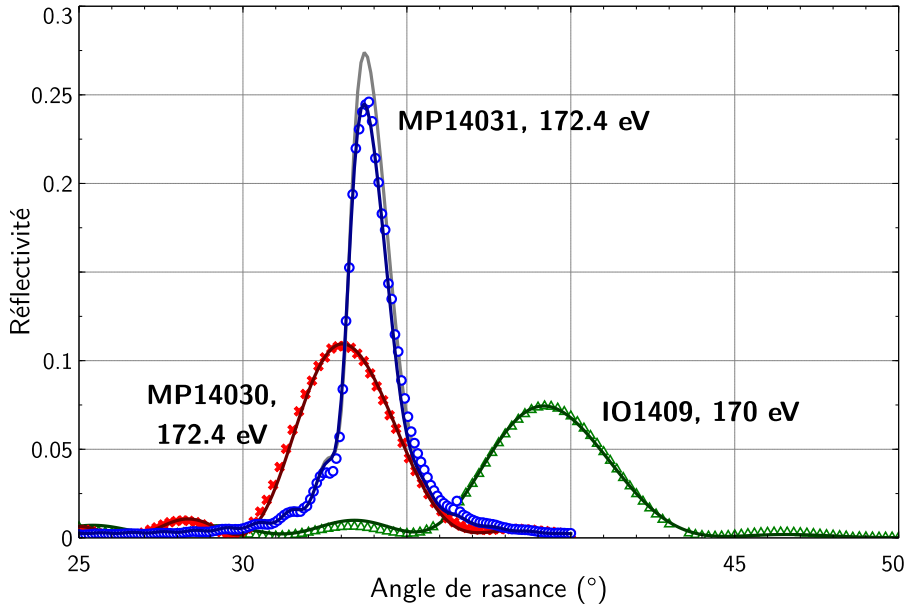


FIGURE 3.15 – Mesure de la réflectivité obtenues au synchrotron SOLEIL (points) pour trois échantillons. La simulation avec le modèle à trois couches Cr/IL-1/B_4C pour chaque échantillon est tracée en traits pleins. Pour l'échantillon MP14031, la simulation avec le modèle à deux couches Cr/B_4C est tracée en trait plein gris.

On peut voir que les premiers pics de Bragg ont bien été mesurés aux positions attendues, ce qui est en accord avec les paramètres des modèles listés dans la Table 3.3. Les échantillons MP14031 et MP14030 ont été mesurés à 172,4 eV ; l'échantillon IO1409 a été mesuré à 170 eV. Bien qu'ils aient les mêmes épaisseurs visées, les échantillons MP14031 et MP14030 présentent des pics de Bragg légèrement décalés, ce qui s'explique par la légère différence de période réelle mis en évidence dans la Table 3.3. Le pic de Bragg de l'échantillon IO1409 est lui aussi décalé par rapport aux deux autres en raison d'une différence de période et parce qu'il n'a pas été mesuré exactement à la même énergie que MP14031 et MP14030 (170 eV, contre 172,4 eV pour les deux autres). L'échantillon MP14031 (35 périodes) a plus de périodes que MP14030 et IO1409 (10 périodes) ; son pic de Bragg est donc plus étroit et plus haut que celui des deux autres échantillons.

Afin de mieux quantifier les performances de ces différents échantillons, on peut comparer leur ratio entre la réflectivité pic mesurée et la réflectivité pic théorique, c'est-à-dire celle qu'on aurait sans tenir compte ni de la rugosité aux interfaces ni de l'interdiffusion. Ainsi, la réflectivité pic mesurée pour MP14031, MP14030 et IO1409 est de respectivement 24,6%, 10,8% et 7,4%. Le ratio $R_{mesurée}/R_{théorique}$ vaut donc respectivement 0,775, 0,725 et 0,738. Ces trois échantillons ont donc des performances similaires.

On a également tracé sur la Figure 3.15 les courbes de réflectivité simulée pour les trois échantillons en utilisant les paramètres donnés en Table 3.3. En particulier, on a tracé pour l'échantillon MP14031 la simulation pour les deux modèles présentés : modèle à deux couches Cr/B_4C (gris) et modèle à trois couches Cr/IL-1/B_4C (bleu foncé). On peut voir qu'il y a une différence non négligeable entre les hauteurs des pics simulés avec les modèles à deux et trois couches : le modèle à deux couches ne parvient pas à approcher suffisamment la mesure, bien que ce modèle soit le meilleur compromis

obtenu pour simuler à la fois la mesure à 8 keV et la mesure à 172,4 eV. Les modèles à trois couches semblent quant à eux bien décrire le comportement des trois échantillons aux énergies de mesure. Ceci confirme donc la validité du modèle à trois couches que nous avons utilisé pour simuler les échantillons.

Afin de pouvoir caractériser également les autres échantillons faisant partie de cette étude et compléter l'étude pour les échantillons analysés à 170 eV, des mesures additionnelles ont été faites sur la ligne Métrologie à SOLEIL à plus haute énergie :

— proche du seuil d'absorption L du Cr ($h\nu \approx 574$ eV) : mesures réalisées pour les échantillons MP14032, MP14033, IO1410, IO1415 et IO1417 ;

— à 600 eV : pour les échantillons MP14031, MP14032, MP14033, IO1410, IO1415 et IO1417 (les simulations permettant de prédire une réflectivité suffisante à cette énergie pour les échantillons étudiés).

Les résultats de ces mesures ont montré un certain désaccord avec les simulations : pour de nombreux échantillons, les pics mesurés (voire l'angle critique le cas échéant) étaient décalés. On a également observé une différence significative de hauteur des pics mesurés par rapport aux simulations. En particulier, pour l'échantillon MP14032 à 600 eV, on s'attendait à obtenir une réflectivité pic de 4,5%, alors que le pic mesuré sortait à peine du bruit de mesure (réflectivité pic estimée à moins de 0,4%, bruit de l'ordre de 0,1%).

Cependant, il est à noter que les simulations pour prédire les résultats de ces mesures ont été faites à partir des premiers modèles issus des mesures à 8 keV. Ces modèles ne tenaient donc pas compte de l'interdiffusion aux interfaces B_4C-sur-Cr, ce qui peut expliquer la différence de hauteur des pics entre simulation et mesure à 600 eV et 574 eV. Néanmoins, l'ajustement des simulations aux mesures proches du seuil du Cr n'ont pas abouti et n'ont pas permis d'obtenir un modèle cohérent avec les autres mesures effectuées (à 8 keV et proche du seuil du bore). Nous avons supposé que ceci était dû à l'inexactitude des constantes optiques du Cr proche de son seuil d'absorption L.

Des mesures additionnelles ont été faites sur la ligne de lumière 6.3.2 de l'ALS pour l'échantillon MP14031. Les résultats sont détaillés dans la section 3.2.4.

3.2.3 Analyse en microscopie électronique

Afin de corroborer les résultats obtenus précédemment, certains échantillons ont également été analysés en microscopie électronique (voir section 3.1.2.2).

Deux échantillons ont été sélectionnés pour être analysés en microscopie électronique : l'échantillon MP14031, dont la réflectivité autour de 170 eV était la plus haute, et l'échantillon MP14032, qui comporte des couches de B_4C beaucoup plus fines. Les échantillons IO n'ont malheureusement pas pu être analysés en microscopie électronique car ils ont tous été déposés sur du *float glass*. Pour les deux échantillons, des images TEM, TEM haute résolution et STEM ont été réalisées.

La Figure 3.16 montre une juxtaposition des images TEM et STEM de l'échantillon MP14031. L'image STEM a été modifiée de sorte à ce que l'épaisseur apparente de la multicouche soit la même que sur l'image TEM, et son contraste a été inversé de manière à voir les couches de Cr sombres et les couches de B_4C claires, comme sur l'image TEM. Cette figure met en évidence le fait que la structure de cet échantillon est bien périodique et composé de couches homogènes, ce qui confirme bien les résultats vus aux sections précédentes.

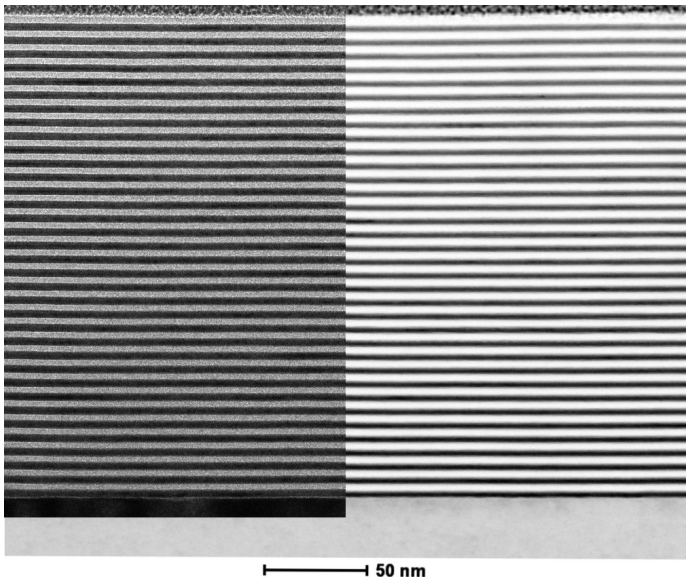


Figure 3.16 – Juxtaposition pour l'échantillon MP14031 d'une image TEM en champ clair de grandissement 64K (à gauche) et d'une image STEM de grandissement 320K (à droite). Pour plus de visibilité, le contraste de l'image STEM a été inversé. Les couches de Cr apparaissent foncées et les couches de B_4C apparaissent claires sur les deux images.

La Figure 3.17 montre une juxtaposition des images TEM et STEM de l'échantillon MP14032, de manière analogue à la Figure 3.16 (échelle adaptée et contraste inversé pour l'image STEM). Ici, on observe bien une structure périodique, particulièrement visible sur l'image STEM (Figure 3.17, à droite), mais les couches semblent plutôt inhomogènes et le contraste est plus faible que pour l'échantillon MP14031.

Les profils d'intensité des différentes images TEM et STEM ont été calculés (moyenne du profil sur l'image entière). Les profils correspondant aux images des Figures 3.16 et 3.17 sont représentés en Figures 3.18(a) et 3.19. La Figure 3.18(b) représente les profils des images TEM et STEM de l'échantillon MP14031 avec les mêmes grandissements que les images de la Figure 3.19 (respectivement 180K et 900K pour les images TEM et STEM).

Le profil tracé en Figure 3.19 pour l'échantillon MP14032 montre qu'il n'y a pas de couches bien distinctes. De manière équivalente, ce phénomène est bien visible en notant la chute du contraste entre les Figures 3.16 et 3.17. Ceci est tout à fait cohérent avec les résultats des sections précédentes, notamment que pour l'échantillon MP14032, la couche de B_4C a disparu et est entièrement utilisée pour former la couche IL-2.

Le profil en intensité de l'image TEM de l'échantillon MP14031 en Figure 3.16(b) montre quant à lui une structure bien périodique avec des couches très régulières. Les maxima représentent les couches de B_4C, et les minima représentent les couches de Cr. On peut également noter la présence d'épaulements aux interfaces B_4C-sur-Cr. Ces épaulements correspondent à la couche d'interface IL-1. On peut remarquer également la présence d'épaulements à l'autre interface (Cr-sur-B_4C), mais ceux-ci sont beaucoup moins marqués, ce qui tend à valider notre modèle à trois couches Cr/IL-1/B_4C.

L'analyse des profils des images TEM a permis de déterminer une estimation de l'épaisseur des différentes couches composant les deux échantillons étudiés. Pour cela, différents points sont repérés sur le profil de l'image étudié de manière à déterminer les bornes des différentes couches (Cr, IL-1 et

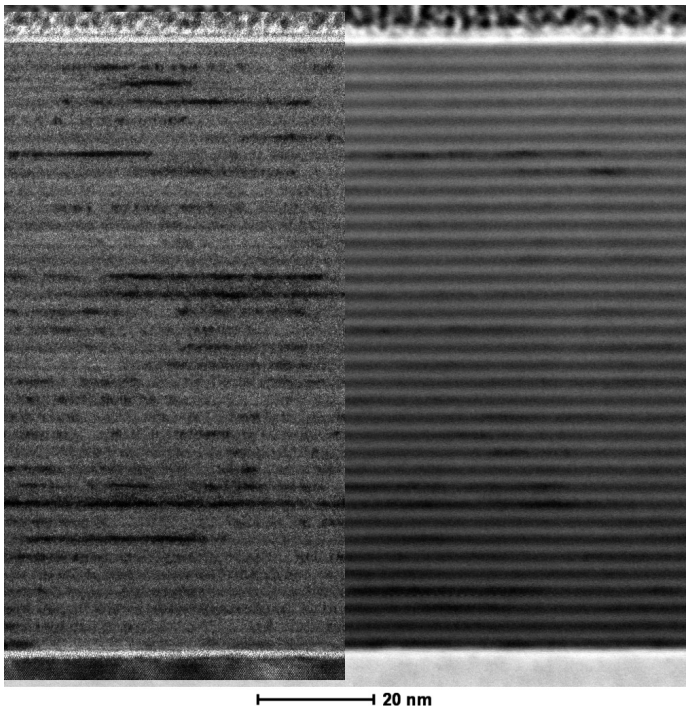


FIGURE 3.17 – Juxtaposition pour l'échantillon MP14032 d'une image TEM en haute résolution de grandissement 180K (à gauche) et d'une image STEM de grandissement 900K (à droite). Pour plus de visibilité, le contraste de l'image STEM a été inversé. Les couches de Cr apparaissent foncées et les couches de B_4C apparaissent claires sur les deux images.

B_4C).

Suivant les cas :

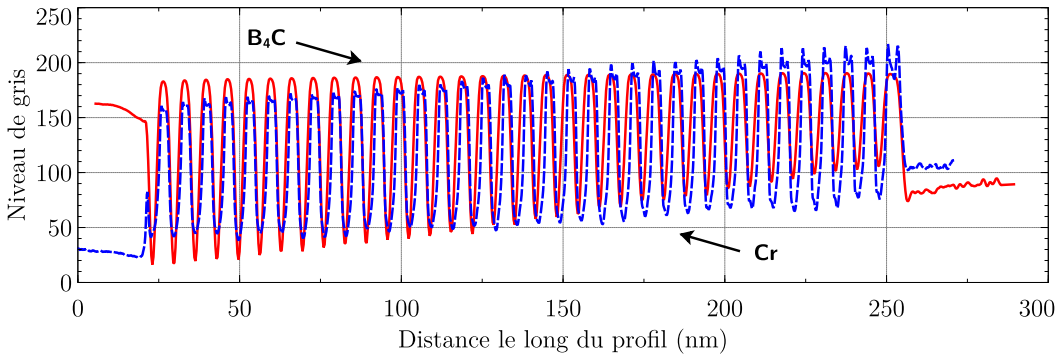
— *si l'on voit bien les épaulements sur le profil*, on repère la position :
  1. du minimum correspondant à la couche de Cr,
  2. du centre du plateau correspondant au B_4C,
  3. du centre de la bosse correspondant à la couche IL-1, et
  4. du centre du creux après la bosse au niveau de l'interface B_4C-sur-Cr.

  Ces différents points sont indiqués par les traits rouges verticaux dans l'encart de la Figure 3.16(b).

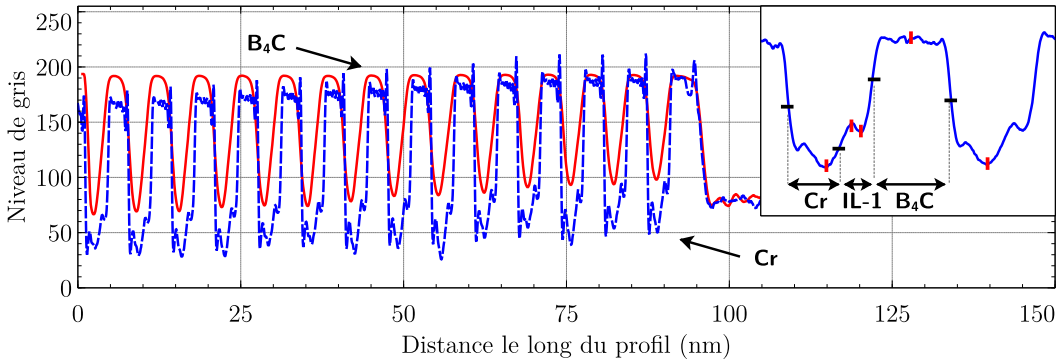
— *si l'on ne distingue pas, ou pas suffisamment les épaulements à l'interface B_4C-sur-Cr*, on repère la position :
  1. du minimum correspondant à la couche de Cr,
  2. du centre du plateau correspondant au B_4C, et
  3. du centre de la couche IL-1, défini par le point à mi-hauteur entre les deux précédents (pour l'interface B_4C-sur-Cr uniquement).

Les bornes des différentes couches sont alors définies comme étant à mi-hauteur entre les points précédents. Ils sont représentés par les traits noirs horizontaux dans l'encart de la Figure 3.16(b), pour le cas où les épaulements sont suffisamment visibles.

Les épaisseurs des couches de Cr, IL-1 et B_4C ont donc été ainsi calculées sur différentes images, puis moyennées. On obtient en moyenne pour MP14031 une épaisseur de Cr de 2,17 nm, de 1,36 pour IL-1 et de 3,13 nm pour B_4C. La valeur moyenne de la période mesurée est de 6,68 nm. Les résultats



(a)



(b)

FIGURE 3.18 – (a) Profils superposés de l'image TEM de grandissement 64K (pointillés bleu) et de l'image STEM de grandissement 320K (trait rouge) pour l'échantillon MP14031. Ces deux images sont représentés en Figure 3.16. (b) Profils superposés de l'image TEM de grandissement 180K (pointillés bleu) et de l'image STEM de grandissement 900K (trait rouge) de l'échantillon MP14031. En encart : détail du profil d'une image TEM haute résolution de grandissement 255K de l'échantillon MP14031, montrant la méthode de détermination des épaisseurs des couches. Le substrat est situé sur la gauche de la figure (visible uniquement sur (a)) ; la partie quasi-constante de la courbe représente la couche de platine déposée sur le dessus de la multicouche pendant la préparation de l'échantillon pour les images TEM.

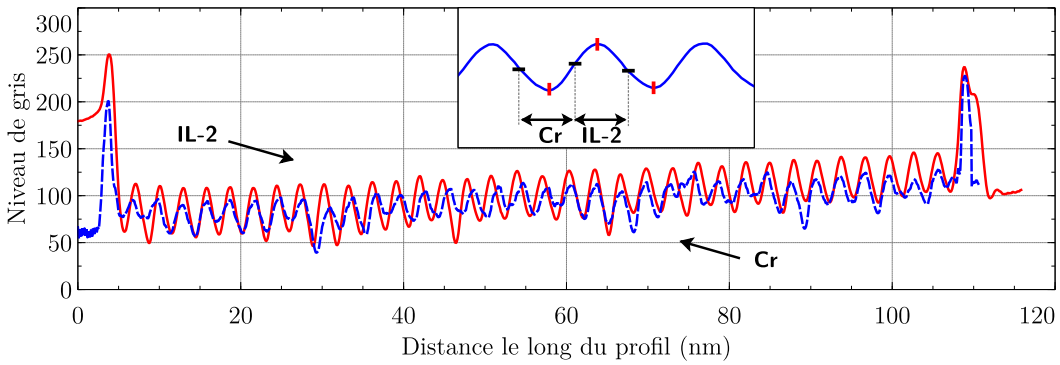


FIGURE 3.19 – Profils superposés de l'image TEM de grandissement 180K (pointillés bleu) et de l'image STEM de grandissement 900K (trait rouge) de l'échantillon MP14032. En encart : détail du profil d'une image STEM de grandissement 900K de l'échantillon MP14032, montrant la méthode de détermination des épaisseurs des couches.

sont donc bien compatibles avec le modèle trouvé via les mesures de réflectivité, pour lequel on avait une couche d'interface d'épaisseur de l'ordre de 1,5 nm.

La même méthode a ensuite été utilisée afin de déterminer les épaisseurs des couches pour l'échantillon MP14032. On a utilisé dans ce cas le modèle à deux couches Cr/IL-2. Ici, les épaisseurs des couches ont été calculées en se basant sur les profils des images STEM, bien moins bruitées pour MP14032 que les images TEM. De manière analogue à l'étude sur l'échantillon MP14031, les minima et maxima correspondant respectivement aux couches de Cr et IL-2 ont été repérés (traits rouges verticaux dans l'encart de la Figure 3.19). Les bornes utilisées pour les calculs d'épaisseurs des couches sont données comme étant les points à mi-hauteur des minima et maxima (traits noirs horizontaux dans l'encart de la Figure 3.19). On trouve ainsi en moyenne pour MP14032 une épaisseur de Cr de 1,42 nm et une épaisseur de IL-2 de 1,57 nm ; la période moyenne est de 2,98 nm. Ces valeurs sont donc très proches de celles trouvées via l'étude en réflectométrie (voir Table 3.3). On peut donc noter un bon accord entre les mesures en microscopie électronique de ces deux échantillons et les mesures de réflectivité à 8 keV et proche du seuil K du bore.

3.2.4 Mesures proches du seuil $L_{2,3}$ du Cr

Comme indiqué en fin de section 3.2.2.2, des mesures additionnelles ont été effectuées à l'ALS sur la ligne 6.3.2. Les résultas sont représentés en Figures 3.20, 3.21 et 3.22.

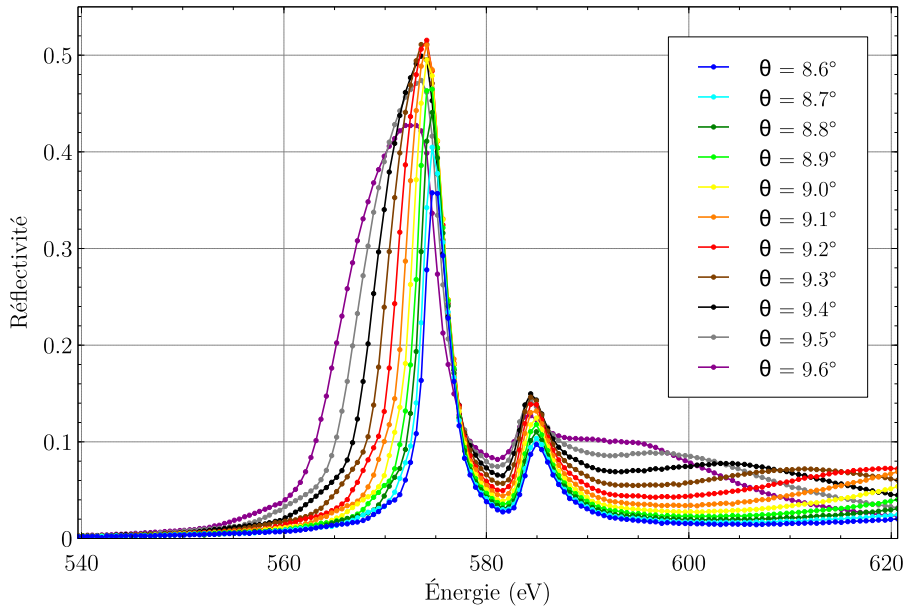


FIGURE 3.20 – Réflectivité en fonction de l'énergie pour l'échantillon MP14031 à un angle de rasance variant de 8,6° à 9,6°, mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS.

La Figure 3.20 montre plusieurs mesures de la réflectivité en fonction de l'énergie des photons incidents, proche du seuil $L_{2,3}$ du Cr, pour différentes angles de rasance variant entre 8,6° et 9,6°. On peut voir clairement sur cette figure que la réflectivité maximale augmente lorsque l'on se rapproche du seuil et que la largeur du pic diminue. On peut remarquer également la présence d'un pic plus petit autour de 585 eV, dont la position ne varie pas avec l'angle d'incidence.

Sur la Figure 3.21, on a tracé la courbe mesurée pour laquelle la réflectivité pic est la plus élevée (51,5% pour une énergie de 572,94 eV). Ceci correspond à un angle de rasance de 9,2°. On a également représenté sur cette figure une courbe de réflectivité simulée s'appuyant sur le modèle à trois couches

(Cr/IL-1/B_4C) de la Table 3.3 et utilisant les constantes optiques tabulées [Henke1993]. On peut voir que l'accord n'est pas bon entre la simulation et la mesure : notamment, la simulation ne prédit pas le second pic observé à une énergie de l'ordre de 585 eV. On considère que cette particularité, non incluse dans les tables des constantes optiques, est dû au seuil L_2 du Cr. Les constantes optiques du Cr ne sont donc pas décrites de manière tout à fait exactes autour du seuil $L_{2,3}$.

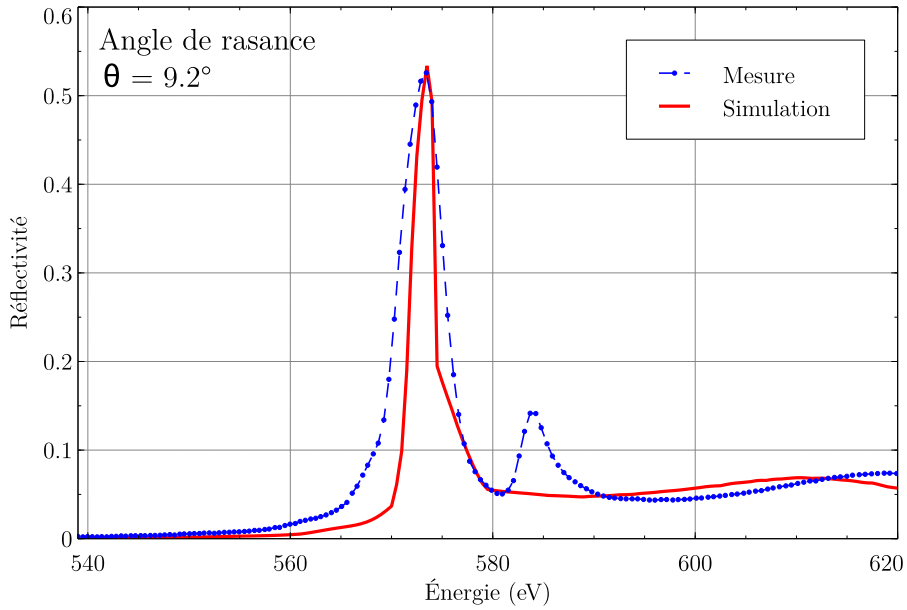


FIGURE 3.21 – Réflectivité en fonction de l'énergie pour l'échantillon MP14031 à un angle de rasance de 9.2°, mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS. La réflectivité mesurée (pointillés bleu) est comparée à une simulation d'après le modèle à 3 couches décrit dans la Table 3.3 en utilisant les constantes optiques tabulées [Henke1993].

La réflectivité de MP14031 a également été mesurée à énergie fixe (572,94 eV et 600 eV) en fonction de l'angle d'incidence à l'ALS. En particulier, la mesure à 600 eV est tracée en Figure 3.22 (points bleu). Sur cette figure est également tracée une simulation de l'échantillon avec le modèle à trois couches Cr/IL-1/B_4C (trait rouge ; voir la Table 3.3 pour les paramètres du modèle). On voit donc à nouveau une différence non négligeable entre la mesure et la simulation, notamment sur l'angle critique, et la forme et la position des pics de Bragg. Nous avons donc optimisé les valeurs des constantes optiques du Cr, en conservant le même modèle à trois couches (paramètres identiques à ceux de la Table 3.3). Les valeurs calculées sont comparées aux constantes optiques des tables [Henke1993] dans l'encart de la Figure 3.22. L'optimisation des constantes optiques permet donc d'obtenir une simulation très proche de la mesure (trait noir sur la Figure 3.22), ce qui tend encore à confirmer la validité du modèle à trois couches.

La même analyse a été faite pour la mesure de l'échantillon à 572,94 eV (voir Figure 3.23) : là encore, on note une différence significative entre la mesure (en bleu) et la simulation utilisant les constantes optiques des tables (en rouge). Les constantes optiques du Cr ont donc été optimisées de manière à approcher au mieux la simulation des mesures. Les valeurs obtenues sont les suivantes : $\delta = -0,003713$ et $\beta = 0,0005701$, alors que les tables indiquent $\delta = -0,002509$ et $\beta = 0,0003354$ pour cette énergie [Henke1993].

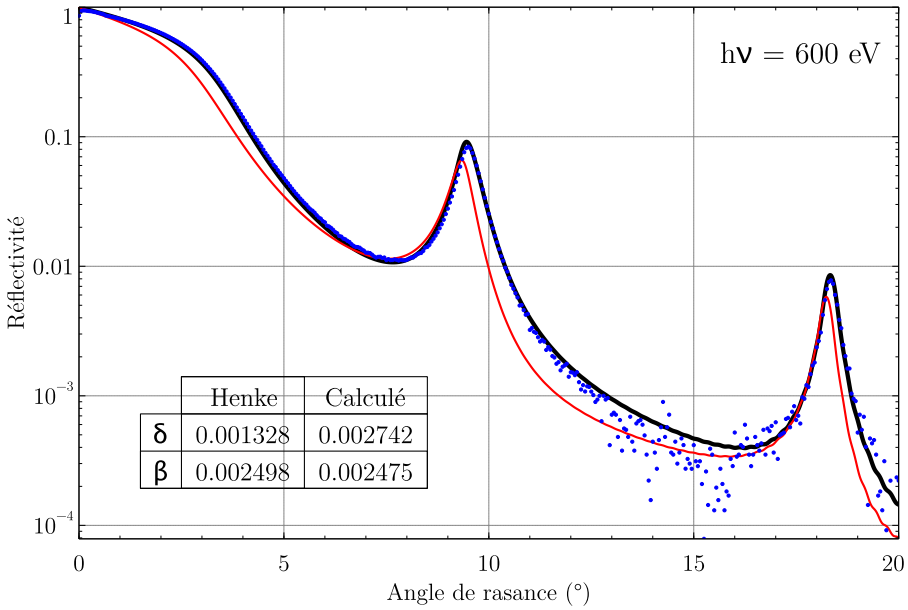


FIGURE 3.22 – Réflectivité en fonction de l'angle de rasance mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS à 600 eV (points bleu). En rouge est représentée la simulation avec le modèle à 3 couches donné en Table 3.3. En trait noir est tracée la simulation utilisant le même modèle mais en recalculant les constantes optiques de manière à mieux s'approcher de la courbe mesurée. Les constantes optiques ainsi calculées sont données dans le tableau en encart et comparées aux valeurs tabulées (voir [Henke1993]).

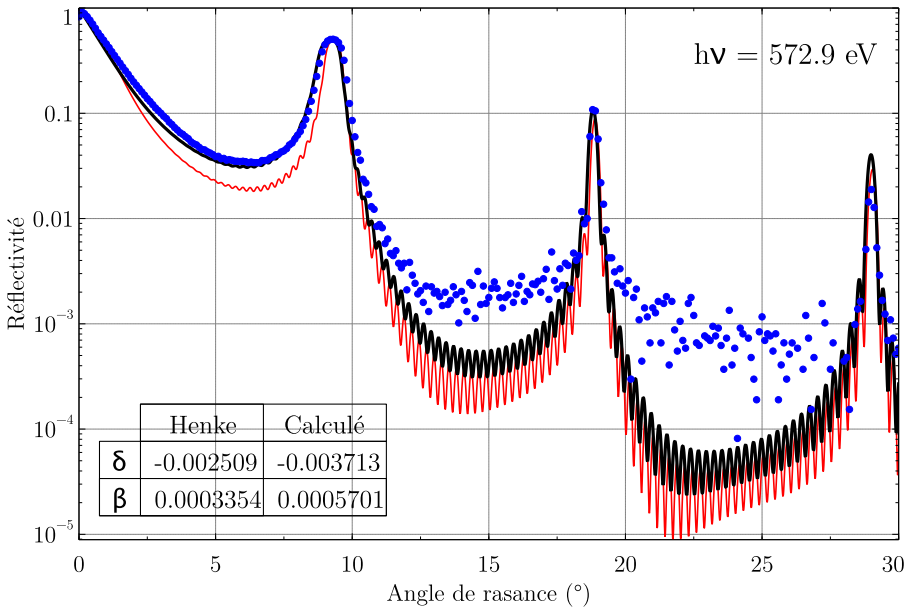


FIGURE 3.23 – Réflectivité en fonction de l'angle de rasance mesurée sur la ligne 6.3.2 à l'ALS à 572,9 eV (points bleu). En rouge est représentée la simulation avec le modèle à 3 couches donné en Table 3.3. En trait noir est tracée la simulation utilisant le même modèle mais en recalculant les constantes optiques de manière à mieux s'approcher de la courbe mesurée. Les constantes optiques ainsi calculées sont données dans le tableau en encart et comparées aux valeurs tabulées (voir [Henke1993]).

3.2.5 Conclusion

En conclusion, cette étude a donc permis de mettre en évidence et modéliser la présence d'interfaces asymétriques pour des multicouches Cr/B_4C. Ces résultats ont été confirmés à la fois par l'analyse de courbes de réflectivité à 8 keV et plus basse énergie sur ligne de lumière synchrotron, mais aussi via l'imagerie de sections transverses de revêtements multicouches en microscopie électronique. Par ailleurs, cette étude a également été l'occasion de mettre en évidence une certaine lacune de constantes optiques du chrome proche de son seuil d'absorption $L_{2,3}$. Les résultats de cette étude ont fait l'objet d'une publication dans le *Journal of Applied Physics* [Burcklen2016]. La mesure de ces constantes optiques devrait nous permettre d'affiner encore le modèle que nous avons obtenu lors de l'étude.

Cette étude a pu servir pour un autre projet avec le synchrotron SOLEIL. Il s'agissait de réaliser des optiques, notamment un monochromateur à réseau, pour la ligne de lumière SIRIUS. Un réseau devait être traité par un revêtement multicouche, de manière à former un réseau multicouche alterné, c'est-à-dire que les épaisseurs du revêtement multicouche sont proches de la profondeur du réseau. Le monochromateur doit fonctionner dans la gamme spectrale 1000 – 4000 eV. Afin que le monochromateur fonctionne correctement dans cette gamme d'énergie, les matériaux utilisés pour le revêtement multicouche sur le réseau ne doivent pas avoir de seuils d'absorption dans cette gamme spectrale. Relativement peu de matériaux répondent à ce critère. Pour cette raison, le couple de matériaux Cr/B_4C a été choisi. Il était donc particulièrement intéressant pour ce projet de modéliser correctement les revêtements multicouches, et notamment leurs interfaces pour pouvoir simuler les performances du réseau.

Enfin, la connaissance du comportement du chrome et du B_4C aux interfaces est particulièrement intéressante car elle devrait nous permettre de mieux modéliser des multicouches Cr/Sc contenant des barrières de diffusion en B_4C.

3.3 Étude de revêtements multicouches pour la fenêtre de l'eau

3.3.1 Contexte de l'étude

Après cette étude détaillée des multicouches contenant du chrome à faible période, et en particulier les interfaces entre le Cr et le B_4C, notre objectif était de déterminer un design optimal pour des revêtements multicouches à faible période dans la fenêtre de l'eau. Pour cela, une étude de multicouches contenant du chrome et du scandium a été réalisée. De manière analogue à l'étude décrite à la section 3.2, de nombreux échantillons ont été déposés, puis analysés dans un premier temps sur le réflectomètre à rayons X rasants puis à la longueur d'onde sur la ligne de lumière Métrologie du synchrotron SOLEIL.

3.3.2 Optimisation des revêtements multicouches pour la fenêtre de l'eau

On a vu dans la littérature (voir le paragraphe 1.2.3.2 du Chapitre 1 ainsi que les références [Gullikson2008] et [Ghafoor2008] par exemple) que la réflectivité de revêtements Cr/Sc dans la fenêtre de l'eau pouvait être augmentée soit en ajoutant des couches barrières en B_4C, soit en modifiant la composition en augmentant la pression résiduelle pendant le dépôt. Nous avons donc ici voulu étudier ces deux effets de manière approfondie en vue de déterminer la manière d'obtenir une réflectivité la plus haute possible. Pour cela, différents types d'échantillons ont été fabriqués par pulvérisation cathodique magnétron sur la machine MP800 :

— des échantillons **Cr/Sc purs** : ces échantillons nous servent de référence. Le détail de ces échantillons ainsi que leur étude en réflectivité est décrite au paragraphe 3.3.2.2 ;

— des échantillons **Cr/Sc avec des couches barrière en B_4C** : l'influence de la couche barrière de B_4C sur la réflectivité a été étudiée, et notamment sa position (interface « Sc-sur-Cr » ou « Cr-sur-Sc ») et son épaisseur. Les résultats sont décrits au paragraphe 3.3.2.2 ;

— des échantillons **CrN_x/Sc** : ces échantillons ont été fabriqués en introduisant un débit contrôlé de diazote dans le bâti pendant le dépôt du chrome. Les résultats sont décrits au paragraphe 3.3.2.3 ;

— des échantillons **CrN_x/B_4C/Sc** : ces échantillons correspondent à une combinaison des deux techniques d'amélioration de la réflectivité du Cr/Sc, c'est-à-dire avec une couche barrière en B_4C à l'interface appropriée (voir 3.3.2.2) et en introduisant de l'azote pendant le dépôt du chrome. Les résultats sont synthétisés au paragraphe 3.3.2.4.

Tous les échantillons ont été déposés sur des substrats en silicium, à une pression de 0,7 mTorr. Le débit d'argon était fixé à 20 sccm ; lorsque le mode réactif a été utilisé, le débit de diazote était de 5 sccm. Le Cr a été déposé en mode DC avec un courant de 50 mA ; le Sc et le B_4C ont été déposés en mode RF à une puissance de respectivement 50 W et 150 W. On utilise ici la même notation que pour l'étude Cr/B_4C (section 3.2) : Cr/Sc veut dire que le premier matériau déposé sur le substrat est le chrome ; le dépôt se finit donc au dessus par une couche de Sc, puis une couche de protection en B_4C, qui sera indiquée par la mention « cap » (comme *capping layer*).

Pour la modélisation des échantillons, on utilise les indices suivant :

— Cr : les tables de Henke [Henke1993] ;

— CrN_x : les facteurs de diffusion atomiques du chrome et de l'azote, en utilisant la valeur de densité ajustée d'après la mesure à 8 keV d'un échantillon CrN_x pur et la composition correspondante (voir 3.3.2.3) ;

— Sc : les tables de Henke [Henke1993] ;

— B_4C : les mesures de R. Soufli et collègues [Soufli2008].

3.3.2.1 Multicouches Cr/Sc

Différents échantillons Cr/Sc ont été déposés, correspondant à différentes valeurs de la période (entre 1,6 nm et 2 nm), différents ratios d'épaisseurs Γ et différents nombres de périodes (entre 100 et 400 périodes). La liste des échantillons Cr/Sc étudiés est donnée en Table 3.4.

TABLE 3.4 – Liste des échantillons Cr/Sc pur étudiés.

Nom	**Structure**	**Épaisseurs visées (nm)**			**Période**
		Cr	Sc	Période	**mesurée (nm)**
MP14081	$[Cr/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,8	0,8	1,6	1,6185
MP14082	$[Cr/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1	1,6	1,583
MP14083	$[Cr/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1,4	2	1,999
MP14084	$[Cr/Sc]_{100}$ + B_4C cap	1	1	2	1,987
MP15002	$[Cr/Sc]_{200}$ + B_4C cap	0,6	1,4	2	1,983
MP15006	$[Cr/Sc]_{400}$ + B_4C cap	0,6	1,4	2	1,983

Ces différents échantillons ont été mesurés par réflectométrie X rasant pour en déduire la période effectivement déposée ainsi que les rugosités aux interfaces. On représente en Figure 3.24 les courbes de réflectivité mesurée à 8 keV pour les échantillons MP14081, MP14082, MP14083 et MP14084.

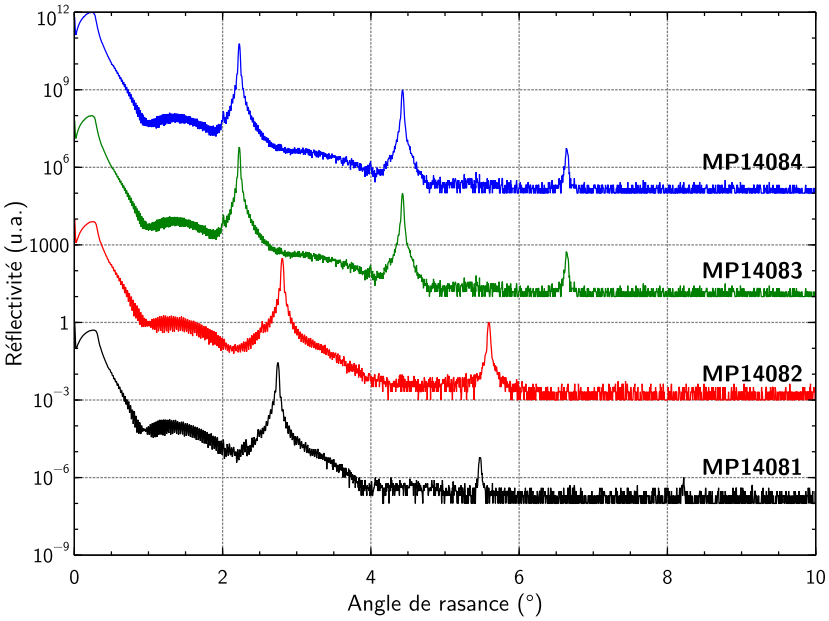


Figure 3.24 – Réflectivité mesurée pour différents échantillons Cr/Sc : MP14081, MP14082, MP14083 et MP14084.

Ces quatre échantillons ont le même nombre de périodes ; les échantillons MP14081 et MP14082 ont la même période (1,6 nm) mais un rapport d'épaisseur différent ($\Gamma = 0{,}5$ et 0,375 respectivement) ; c'est le cas également des échantillons MP14083 et MP14084 (période de 2 nm, $\Gamma = 0{,}3$ et 0,5 respectivement). La Figure 3.24 montre des courbes de réflectivité très similaires pour ces quatre échantillons. La rugosité moyenne semble relativement proche pour tous ces échantillons : les ajustements des mesures aboutissent à des rugosités moyennes variant entre 0,35 et 0,43 nm. La variation du rapport d'épaisseur Γ semble également ne pas avoir une très grande influence sur la rugosité moyenne.

Ils ont ensuite été mesurés au synchrotron SOLEIL sur la branche XUV de la ligne Métrologie pour différentes énergies de photons comprises entre 320 eV et 395 eV. On donne en Table 3.5 la valeur des réflectivités pics mesurées pour ces échantillons Cr/Sc. La Figure 3.25 montre quelques courbes mesurées à une énergie de photons de 320 eV pour les échantillons MP14083, MP15002 et MP15006.

Table 3.5 – Réflectivité maximale mesurée pour les échantillons Cr/Sc mesurés au synchrotron SOLEIL.

	320 eV	370 eV	395 eV	380–410 eV
MP14081	–	–	3,7%	3,7%
MP14083	2,2%	–	5,9%	6,4%
MP15002	4,6%	6%	12%	12,2%
MP15006	6,2%	8,3%	15,7%	15,8%

Ces trois échantillons ont tous environ les mêmes épaisseurs de couches, seul le nombre de périodes change. Les résultats des mesures de réflectivité montrent que la réflectivité croît toujours malgré le fort nombre de période pour le dernier échantillon (MP15006). Avec 400 périodes, on n'a donc

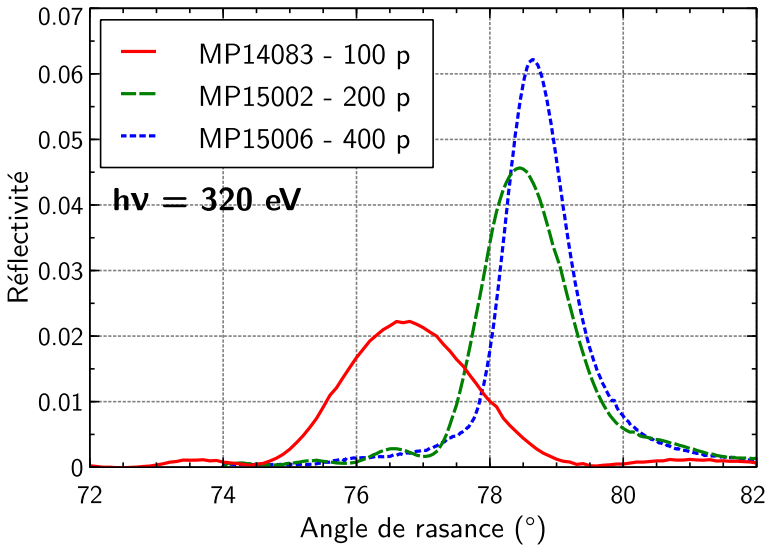


FIGURE 3.25 – Réflectivité mesurée en fonction de l'angle de rasance à une énergie de 320 eV pour les échantillons $[Cr/Sc]_{100}$ (MP14083 ; en rouge), $[Cr/Sc]_{200}$ (MP15002 ; en vert) et $[Cr/Sc]_{400}$ (MP15006 ; en bleu).

vraisemblablement pas encore atteint la saturation et le dépôt de 400 périodes permet donc un gain significatif de réflectivité. On mesure ainsi une réflectivité pic de 6,2% à un angle d'incidence de 11,4° et à une énergie de 320 eV. Cette valeur est relativement proche des résultats obtenus dans la littérature pour cette énergie. À titre de comparaison, on peut noter que A. Guggenmos et collègues [Guggenmos2014] ont obtenu une réflectivité pic de 8% autour de 300 eV pour un angle d'incidence de 5° (400 périodes également). Cette réflectivité de 8% a été obtenue en utilisant du polissage ionique toutes les 10 périodes pour limiter la rugosité interfaciale.

3.3.2.2 Ajout de B_4C aux interfaces

E. Gullikson et collègues ont mesuré de très bonnes réflectivités pour des multicouches Cr/Sc contenant du B_4C [Gullikson2008]. Nous avons donc étudié l'influence de la présence de couches barrières de B_4C. Pour cela, nous avons choisi de fabriquer des échantillons avec différentes épaisseurs de B_4C et en positionnant la couche barrière soit à l'interface « Sc-sur-Cr » (échantillons $Cr/B_4C/Sc$; voir la Figure 3.26(a)), soit à l'interface « Cr-sur-Sc » (échantillons $B_4C/Cr/Sc$; voir la Figure 3.26(b)). La liste des échantillons $Cr/B_4C/Sc$ et $B_4C/Cr/Sc$ étudiés est donnée en Table 3.6.

TABLE 3.6 – Liste des échantillons $Cr/B_4C/Sc$ et $B_4C/Cr/Sc$ étudiés (*mes.* = mesurée).

Nom	**Structure**	**Épaisseurs visées (nm)**				**Période**
		Cr	Sc	B_4C	Période	**mes. (nm)**
MP15004	$[Cr/B_4C/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1	0,3	1,9	1,645
MP15005	$[B_4C/Cr/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1	0,3	1,9	1,633
MP15007	$[Cr/B_4C/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1	0,54	2,2	1,72
MP15008	$[B_4C/Cr/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1	0,54	2,2	1,718
MP15009	$[B_4C/Cr/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1	0,79	2,5	1,833

Les mesures à 8 keV ne montrent pas une différence significative de la rugosité moyenne entre

(a) (b)

Figure 3.26 – Schéma des échantillons contenant des couches barrières en B_4C : (a) échantillon $Cr/B_4C/Sc$ (b) échantillon $B_4C/Cr/Sc$.

ces différents échantillons et leur « équivalent » Cr/Sc (par exemple, on peut comparer MP15004 et MP15005 à MP14081 qui a une période très proche). En particulier, l'épaisseur de la couche barrière de B_4C ne semble pas avoir un effet flagrant sur la qualité du revêtement multicouche. On a tracé par exmple en Figure 3.27 les courbes mesurées de réflectivité à 8 keV pour l'échantillon Cr/Sc MP14081 ainsi que les trois échantillons de structure $B_4C/Cr/Sc$ (MP15005, MP15008 et MP15009) présentant des épaisseurs de couche de B_4C de 0,3 nm à 0,9 nm.

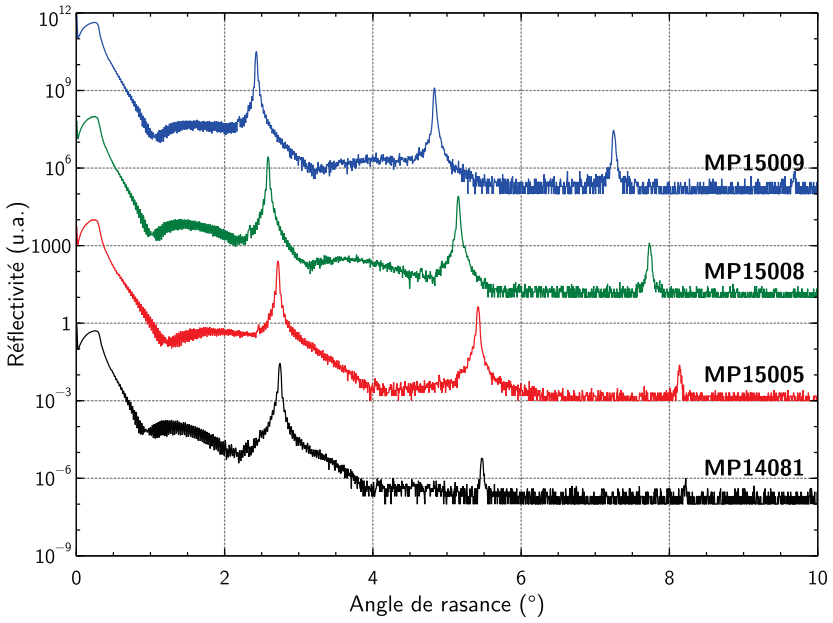


Figure 3.27 – Réflectivité en fonction de l'angle de rasance mesurée à 8 keV pour différents échantillons $B_4C/Cr/Sc$ et un échantillon Cr/Sc.

En revanche, on voit très nettement une différence sur la hauteur du pic de Bragg d'ordre 1 mesuré par exemple sur un scan en fonction de l'énergie (voir Figure 3.28) au synchrotron SOLEIL. On donne également en Table 3.7 les réflectivités pic mesurées au synchrotron SOLEIL pour les échantillons $Cr/B_4C/Sc$ et $B_4C/Cr/Sc$.

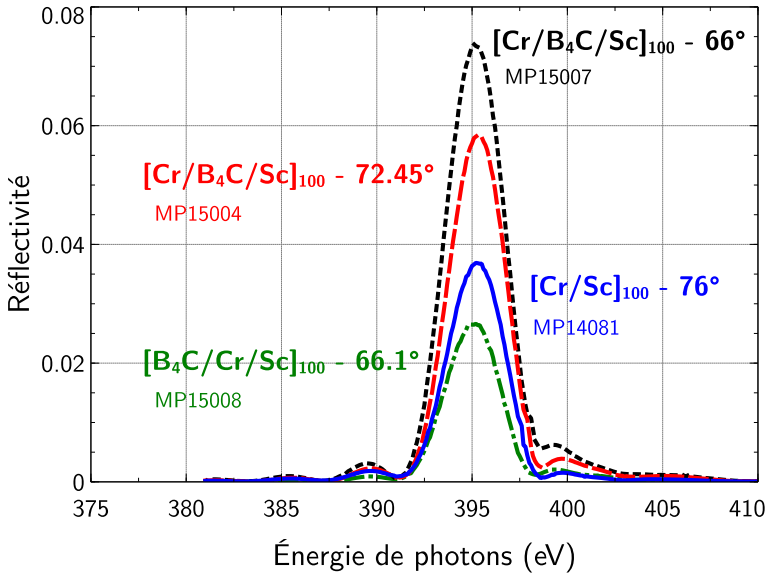


FIGURE 3.28 – Réflectivité mesurée en fonction de l'énergie de photon pour les échantillons MP14081, MP15004, MP15007 et MP15008. L'angle de rasance utilisé pour la mesure de chaque échantillon est indiqué dans la figure.

TABLE 3.7 – Réflectivités maximales mesurées pour les échantillons Cr/B_4C/Sc (MP15004 et MP15007) et B_4C/Cr/Sc (MP15008).

	370 eV	395 eV	380–410 eV
MP15004	–	5,7%	5,8%
MP15007	2,9%	7,3%	7,4%
MP15008	1%	2,7%	2,6%

La Figure 3.28 montre que l'ajout d'une fine couche de B_4C à l'interface « Sc-sur-Cr » (voir l'échantillon MP15004 par rapport à l'échantillon MP14081) permet d'augmenter significativement la réflectivité : on mesure une réflectivité pic de 3,7% pour l'échantillon Cr/Sc, contre 5,8% pour l'échantillon Cr/B_4C/Sc. L'augmentation de l'épaisseur de la couche de B_4C (voir l'échantillon MP15007 vs. MP15004) permet également de gagner un peu en réflectivité : on mesure 7,4% avec une épaisseur visée de 0,54 nm de B_4C, contre 5,8% pour une épaisseur visée de B_4C de 0,3 nm. Néanmoins, l'angle de mesure n'est pas le même à cause d'une différence de période entre ces deux échantillons. On peut donc supposer également qu'une partie de la différence de réflectivité vient du fait que l'angle est plus rasant pour MP15007, ce qui rend la mesure moins sensible à la rugosité.

On peut comparer également la réflectivité des échantillons MP15007 et MP15008 : ces deux échantillons ont les mêmes épaisseurs visées mais l'ordre des matériaux est différent (voir Table 3.6). Ainsi, on observe que l'échantillon Cr/B_4C/Sc (MP15007) réfléchit beaucoup plus que l'échantillon B_4C/Cr/Sc (MP15008) : ce dernier a une réflectivité maximale de 2,6%, soit presque 3 fois moins que son semblable Cr/B_4C/Sc. On remarque même que l'ajout de B_4C à cette interface (« Cr-sur-Sc ») réduit la réflectivité par rapport à un revêtement Cr/Sc simple (voir l'échantillon MP14081). Dans le cas où l'on souhaite augmenter la réflectivité en ajoutant des couches barrières en B_4C, il est donc primordial de le faire pour la bonne interface, sous peine d'avoir l'effet inverse. L'optimisation de la réflectivité se fait donc via un design du type « Cr/B_4C/Sc ».

On verra au paragraphe 3.3.2.5 que la simulation des échantillons basés sur du Cr/Sc indique que la rugosité aux interfaces « Sc-sur-Cr » est élevée et peut être simulée également par de l'interdiffusion. Suite aux résultats de l'étude des revêtements Cr/B_4C (voir section 3.2), on peut en conclure que le B_4C interagit avec le Cr pour former une couche d'interface. On peut supposer que cette couche d'interface permet de limiter l'interdiffusion entre Cr et Sc ou de limiter la cristallisation du Cr, et donc réduire l'épaisseur de l'interface. Dans le cas de revêtements $B_4C/Cr/Sc$, l'épaisseur de l'interface « Sc-sur-Cr » n'est donc pas modifiée par rapport à un revêtement Cr/Sc, et l'ajout de B_4C à l'interface « Cr-sur-Sc » ne permet donc pas d'augmenter la réflectivité.

3.3.2.3 Nitruration du chrome

Nous avons ensuite étudié l'influence de la nitruration du Cr sur la réflectivité des multicouches Cr/Sc dans la fenêtre de l'eau. Pour cela, des échantillons contenant du chrome nitruré ont été fabriqués en introduisant du diazote dans la chambre de dépôt lorsque le substrat se situe au dessus de la cible de chrome. La proportion de gaz dans le bâti de dépôt est la suivante : 80% d'argon et 20% de diazote. Le matériau déposé est alors un mélange de Cr et de N, que nous noterons par la suite « CrN_x ».

Afin de correctement étalonner la nouvelle vitesse de dépôt correspondant au CrN_x, un échantillon de CrN_x a été fabriqué puis mesuré en réflectométrie X rasants à 8 keV (voir 3.1.2.1). Cela nous a permis également de calculer la densité de la couche déposée afin d'obtenir des informations sur ses constantes optiques. Ainsi, un ajustement de la courbe mesurée pour cet échantillon a permis de calculer une densité de 6,42 g/cm^3 pour une épaisseur de 45,68 nm. Cette densité correspondrait à une composition de Cr_2N. Pour la suite, les échantillons contenant du CrN_x ont été simulés en utilisant les facteurs de diffusion atomiques [Henke1993] avec les paramètres suivants :

— densité : 6,42 g/cm^3 ;

— composition : Cr_2N.

La liste des échantillons CrN_x/Sc étudiés est donnée en Table 3.8.

Table 3.8 – Liste des échantillons CrN_x/Sc étudiés.

Nom	**Structure**	**Épaisseurs visées (nm)**			**Période mesurée (nm)**
		CrN_x	Sc	Période	
MP15013	$[CrN_x/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,6	1	1,6	1,657
MP15015	$[CrN_x/Sc]_{100}$ + B_4C cap	0,7	1	1,7	1,723
MP15069	$[CrN_x/Sc]_{200}$ + B_4C cap	0,688	0,88	1,568	1,572
MP15071	$[CrN_x/Sc]_{273}$ + B_4C cap	0,7	0,88	1,58	1,584
MP15072	$[CrN_x/Sc]_{400}$ + B_4C cap	0,681	0,88	1,561	1,561
MP15089	$[CrN_x/Sc]_{400}$ + B_4C cap	0,737	0,88	1,617	1,616

La Figure 3.29 montre quelques résultats issus des mesures de réflectivité en fonction de l'énergie à angle d'incidence fixe au synchrotron SOLEIL. Sur cette figure, on a comparé les performances de deux échantillons $[CrN_x/Sc]_{100}$ (MP15013 et MP15015) à un échantillon $[Cr/Sc]_{100}$ (MP14081), dont la période est proche de celle de l'échantillon MP15013, et à un échantillon $Cr/B_4C/Sc$ 100 périodes (MP15007) dont la période est proche de celle de MP15015. On voit ici clairement que l'ajout d'azote pendant le dépôt du chrome permet bien d'augmenter la réflectivité, d'une part par rapport à un

revêtement Cr/Sc simple (6,4% pour MP1513 contre 3,7% pour MP14081), d'autre part aussi par rapport au revêtement Cr/B_4C/Sc (9,5% pour MP15015 contre 7,4% pour MP15007).

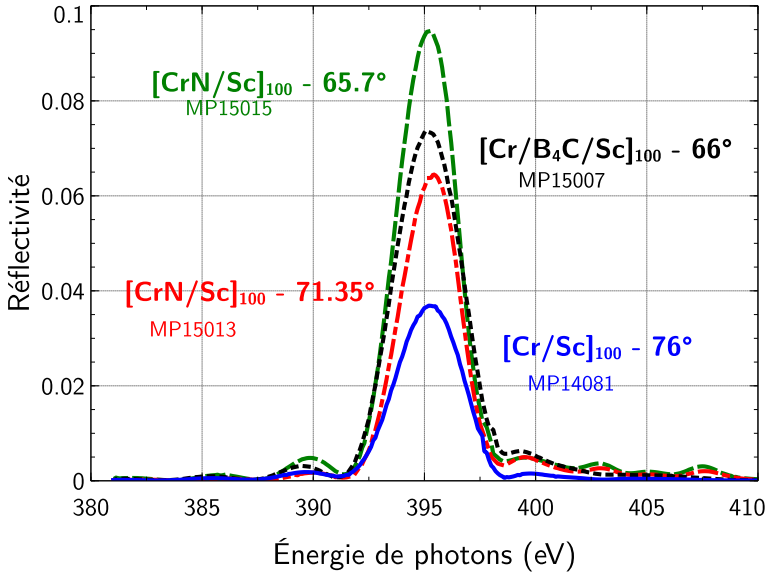


FIGURE 3.29 – Réflectivité mesurée en fonction de l'énergie de photon pour les échantillons MP14081, MP15007, MP15013 et MP15015. L'angle de rasance utilisé pour la mesure de chaque échantillon est indiqué dans la figure.

Une étude supplémentaire de revêtements CrN_x/Sc a été faite en fonction du nombre de périodes pour une période très courte. La période de ces échantillons (MP15069, MP15071, MP15072) a été calculée pour une énergie très proche du seuil L du scandium (395 eV) et un angle d'incidence quasi normal. Ainsi, pour une énergie de 395 eV et un angle d'incidence de 3°, la loi de Bragg (voir équation (1.38) Chapitre 1) donne une période de 1,57 nm. Différents échantillons ont été fabriqués pour une période proche de 1,57 nm, avec plusieurs nombres de périodes (200, 273 et 400 périodes) afin d'avoir une estimation de la réflectivité maximale que l'on peut atteindre. Ces échantillons, dont les paramètres de dépôts sont regroupés en Table 3.8 (échantillons MP15069 à MP15089), ont ensuite été mesurés à 8 keV par réflectométrie X, puis proche du seuil L du scandium au synchrotron SOLEIL. Des mesures sont représentées en Figure 3.30. On obtient (voir l'échantillon MP15089) une réflectivité maximale de presque 11% pour un angle d'incidence de l'ordre de 15°.

3.3.2.4 Combinaison des deux méthodes d'optimisation

Nous avons enfin déposé des échantillons, en utilisant à la fois l'introduction d'azote pendant le dépôt du chrome et les couches barrières de B_4C à l'interface adaptée (échantillons CrN_x/B_4C/Sc). Différents échantillons ont été déposés avec plusieurs nombres de périodes. La période des échantillons était là aussi proche de 1,57 nm afin d'obtenir un pic de Bragg proche de l'incidence normale pour une énergie de photons juste en dessous du seuil L du scandium. La liste des échantillons CrN_x/B_4C/Sc étudiés est donnée en Table 3.9. Lors de ces dépôts, nous avons rencontré des problèmes de stabilité du plasma. Pour régler cela, la pression dans le bâti pendant le dépôt du B_4C a été augmentée à 0,8 mTorr.

La réflectivité de ces échantillons a également été mesurée par réflectométrie X à 8 keV et autour du seuil L du Sc vers 398 eV. On montre en Figure 3.31 la réflectivité maximale mesurée à 398 eV pour

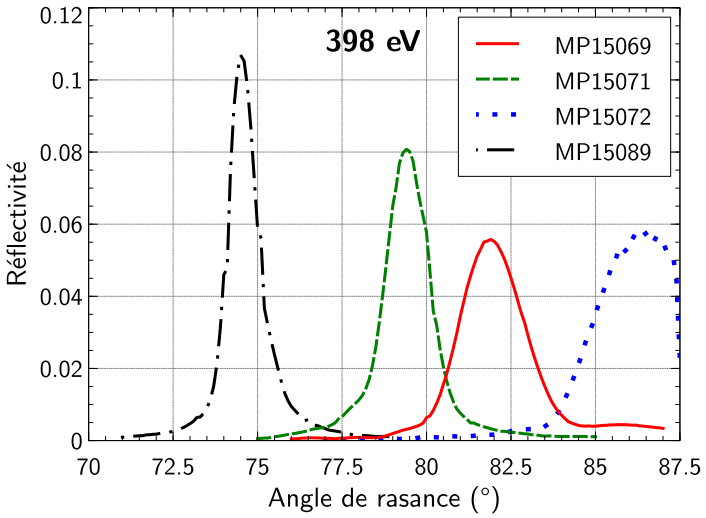


Figure 3.30 – Réflectivité mesurée en fonction de l'angle de rasance à 398 eV pour les échantillons MP15069, MP15071, MP15072 et MP15089

Table 3.9 – Liste des échantillons $CrN_x/B_4C/Sc$ étudiés (*mes.* = mesurée).

Nom	**Structure**	**Épaisseurs visées (nm)**				**Période**
		CrN_x	Sc	B_4C	Période	**mes. (nm)**
MP15084	$[CrN_x/B_4C/Sc]_{200}$ + B_4C cap	0,491	0,8	0,28	1,571	1,571
MP15086	$[CrN_x/B_4C/Sc]_{300}$ + B_4C cap	0,483	0,8	0,28	1,563	1,563
MP15087	$[CrN_x/B_4C/Sc]_{400}$ + B_4C cap	0,488	0,8	0,28	1,568	1,568

différents échantillons CrN_x/Sc (ronds bleus) et $CrN_x/B_4C/Sc$ (carrés rouges) en fonction du nombre de périodes. On voit clairement que la réflectivité des multicouches $CrN_x/B_4C/Sc$ est grandement améliorée par rapport aux multicouches CrN_x/Sc (presque un facteur 2). La réflectivité maximale atteinte à 398 eV est de 21% pour l'échantillon à 400 périodes pour un angle d'incidence de 6,1°. Par ailleurs, on remarque sur la Figure 3.31 que les points correspondant aux échantillons $CrN_x/B_4C/Sc$ sont alignés ; cela semble signifier que la saturation n'est pas encore atteinte avec 400 périodes. On peut donc espérer une réflectivité encore plus élevée en augmentant le nombre de périodes au delà de 400 périodes.

3.3.2.5 Modélisation des échantillons

Afin de mieux comprendre les résultats obtenus, les échantillons ont été simulés d'après les courbes de réflectivité mesurées à 8 keV et autour du seuil L du Sc. Par exemple, la Figure 3.32 montre la courbe de réflectivité mesurée (points rouges) à 8 keV pour l'échantillon dont la réflectivité à 397 eV était la plus élevée ($[CrN_x/B_4C/Sc]$ 400 périodes – MP15087) ainsi que des simulations correspondantes (voir notamment la courbe en pointillés bleus).

Cette simulation décrit relativement bien le comportement en réflectivité de cet échantillon. Néanmoins, on peut voir que les pics de Bragg sont un peu élargis par rapport à la simulation ; ceci est particulièrement visible dans l'encart de la Figure 3.32, qui montre un zoom sur le troisième pic de Bragg. L'élargissement des pics a été attribué à une dérive de la période qui survient au cours du dépôt. En effet, cet échantillon possède beaucoup de couches (400 périodes) et le dépôt a donc été

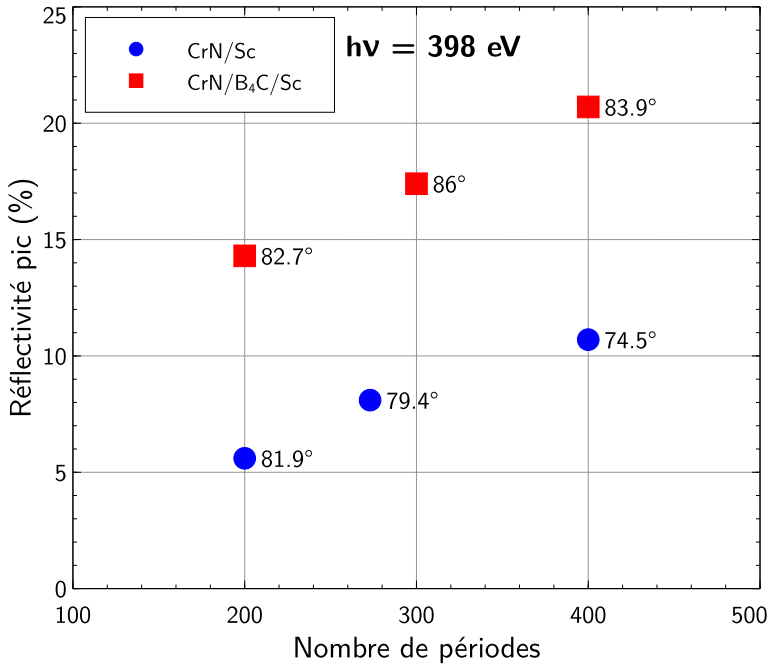


FIGURE 3.31 – Réflectivité pic mesurée à une énergie de photons de 398 eV en fonction du nombre de périodes pour les échantillons [CrN_x/Sc] en bleu et [CrN_x/B_4C/Sc] en rouge. L'angle de rasance du sommet du pic mesuré est indiqué à côté du point correspondant.

très long (plus de 20h). L'échauffement des cibles pendant la fabrication de l'échantillon a pu induire une légère variation de la vitesse de dépôt avec le temps, donc une variation progressive des épaisseurs effectivement déposées. Ce phénomène a été modélisé par un gradient en profondeur de l'épaisseur des couches de CrN_x. Cette variation d'épaisseur a été ajustée de manière à simuler au mieux la largeur des pics de Bragg, notamment l'ordre 3, sur la courbe mesurée à 8 keV (voir la courbe noire sur la Figure 3.32). On a ainsi estimé la dérive moyenne sur la période à environ 0,025 pm/période pour cet échantillon [2].

Les autres échantillons étudiés ayant eux aussi beaucoup de couches (100 périodes minimum), la dérive de période a été également simulée pour les autres échantillons. On trouvera en Table 3.10 les épaisseurs estimées par l'ajustement de la simulation aux mesures de plusieurs échantillons contenant les différentes structures présentées dans les paragraphes précédents. On a notamment trouvé que le gradient de période pour les échantillons MP15069 et MP15084 était de l'ordre de 0,05 pm/période et de l'ordre de 0,04 pm/période pour MP15086.

On a tracé en Figure 3.33 la réflectivité en fonction de l'angle de rasance à 397 eV pour les échantillons MP15069, MP15084 et MP15087. Ici, les mesures sont représentées par les points ; les simulations avec gradient de période sont tracées en pointillés. On a également tracé sur cette figure la simulation sans tenir compte du gradient de période pour l'échantillon MP15087 (en trait plein). On voit ainsi que la dérive de la période permet de simuler à la fois l'élargissement du pic mais aussi la perte de réflectivité. En effet, la réflectivité pic mesurée est de 22,9% pour cet échantillon ; la réflectivité pic simulée en tenant compte de la dérive de période est de 24,1% alors qu'elle est de 30,5% sans dérive de période.

2. Cette variation moyenne d'épaisseur par période est faible devant la précision de dépôt de la machine MP800S. Elle semble donc difficilement compensable par période. Il est cependant envisageable de réaliser une compensation par bloc.

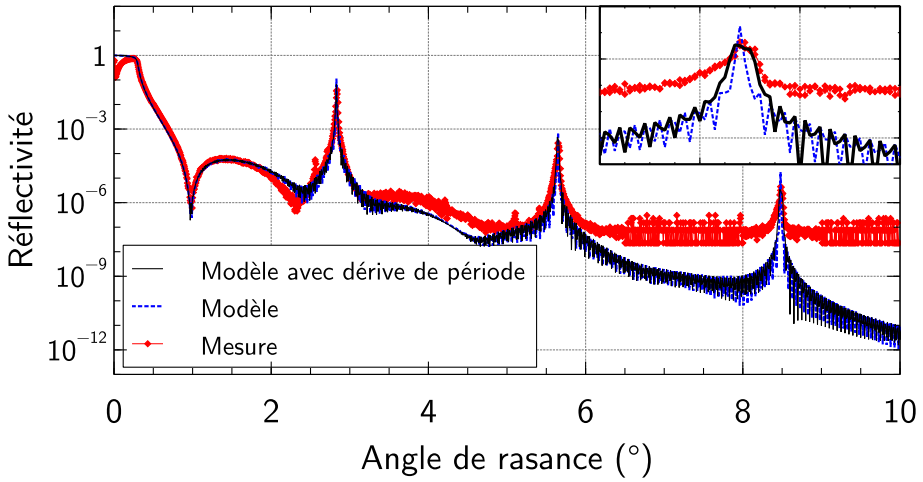


Figure 3.32 – Réflectivité en fonction de l'angle de rasance à 8,05 keV pour l'échantillon MP15087. Sur ce graphe sont tracés la réflectivité mesurée (points rouges), la courbe de réflectivité simulée (points bleus) et la courbe de réflectivité simulée en tenant compte de la dérive de période (trait plein noir). En encart, on voit un grossissement du troisième pic de Bragg qui met en évidence l'élargissement du pic mesuré et la simulation de cet élargissement par une variation de la période au cours du dépôt.

Table 3.10 – Épaisseurs et rugosités ajustées pour les échantillons MP14083, MP15069, MP15084, MP15086 et MP15087. Les épaisseurs (ép.) et rugosités (σ) sont données en nm.

Structure	Échantillon	CrN_x ou Cr		IL		B_4C		Sc		B_4C cap	
		ép.	σ	ép.	σ	ép.	σ	ép.	σ	ép.	σ
Cr/Sc	MP14083	0,617 à 0,623	0,6	–	–	–	–	1,38	0,25	2,4	0,3
CrN_x/Sc	MP15069	0,259 à 0,269	0,3	1,2	0,3	–	–	0,1082	0,18	2,5	0,4
CrN_x/B_4C/Sc	MP15084	0,725 à 0,735	0,6	–	–	0,3	0,4	0,541	0,21	2,3	0,3
	MP15086	0,806 à 0,818	0,6	–	–	0,3	0,3	0,4505	0,21	2,3	0,3
	MP15087	0,772 à 0,782	0,7	–	–	0,3	0,4	0,478	0,2	2,35	0,3

Les simulations des échantillons étudiés (voir la Table 3.10) utilisent une rugosité très élevée pour l'interface « *matériau*-sur-Cr » (ou « *matériau*-sur-CrN_x »). Ces valeurs ne sont d'ailleurs pas physiques puisqu'elles sont de l'ordre de l'épaisseur de la couche de $Cr(N_x)$. L'utilisation d'interfaces très asymétriques avec une forte rugosité sur la couche de Cr (ou CrN_x)[3] est néanmoins nécessaire pour simuler la hauteur des différents pics de Bragg sur les mesures à 8 keV, ainsi que pour décrire une partie de la perte de réflectivité sur les pics mesurés proche du seuil L du Sc. Pour de nombreux échantillons cependant, tels que MP14083 (Cr/Sc), ou MP15071 et MP15089 (CrN_x/Sc), cette rugosité élevée ne suffit pas à expliquer par la simulation la forte perte de réflectivité en incidence quasi normale proche de 398 eV.

Par ailleurs, la prise en compte à la fois de cette forte rugosité à une interface en même temps que la dérive de période (gradient en profondeur) ne suffit pas toujours pour expliquer totalement la perte de réflectivité du pic mesuré par rapport au pic simulé. Pour l'échantillon MP15069, j'ai utilisé une couche d'interface qui simulerait de l'interdiffusion, justifiable par la très haute rugosité à l'interface

3. Par abus de langage et pour alléger les notations, on pourra utiliser dans la suite l'expression « rugosité de la couche X » pour désigner la rugosité à l'interface entre ce matériau X et le matériau déposé au dessus.

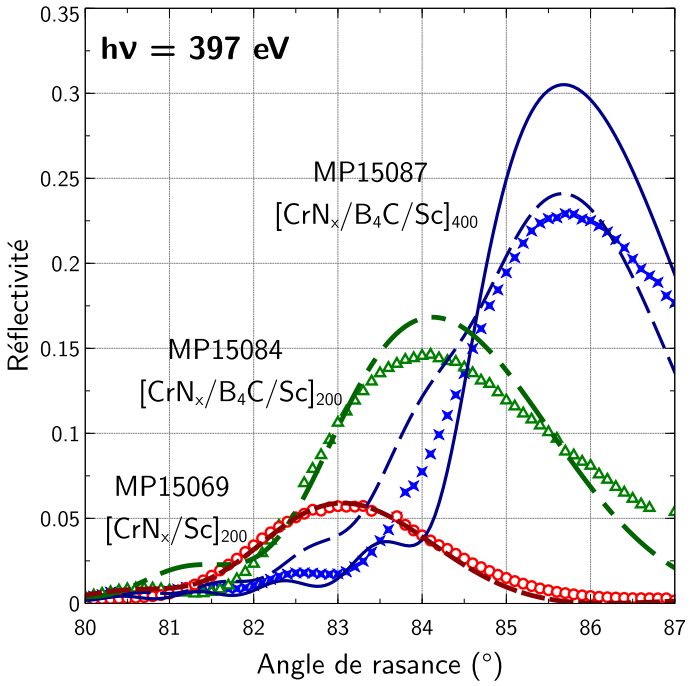


FIGURE 3.33 – Réflectivité en fonction de l'angle de rasance à 397 eV pour des revêtements CrN_x/Sc et CrN_x/B_4C/Sc. Les courbes mesurées sont représentées par les points. La courbe en trait plein correspond à la simulation de l'échantillon MP15087 sans tenir compte de la dérive de période. Les courbes en pointillés représentent les simulations des trois échantillons en tenant compte de la dérive de période.

concernée. Ce modèle est tout à fait semblable à celui utilisé dans l'étude Cr/B_4C (voir section 3.2) : une couche d'interface IL est introduite entre la couche de CrN_x et la couche de Sc et ses constantes optiques sont la moyenne de celles de CrN_x et Sc. Les épaisseurs déterminées en utilisant ce modèle pour l'échantillon MP15069 sont détaillées dans la Table 3.10. La courbe de réflectivité correspondante est donnée en Figure 3.33 (pointillés rouges) : elle semble bien décrire le comportement de cet échantillon à 397 eV. La modélisation de l'interdiffusion à cette interface pour d'autres échantillons semblables (tels que MP15071 ou MP15089) ne permet cependant pas de simuler complètement la perte de réflectivité du pic autour de 397 eV. En particulier, une simulation de l'interdiffusion entre les couches de CrN_x et B_4C pour l'échantillon MP15087 ne change quasiment pas la simulation présentée en Figure 3.33 et Table 3.10.

On peut supposer que l'on arrive à la limite du modèle utilisé pour décrire l'influence de la rugosité sur la réflectivité des multicouches dans le cas présent, dans lequel les couches ont une épaisseur de l'ordre du nm ou en dessous. Des analyses supplémentaires seraient nécessaires afin de pouvoir comprendre plus en détail la raison de cette très forte perte de réflectivité.

Parallèlement, un autre problème survient lors de la modélisation des échantillons contenant du chrome nitruré. Cette simulation est difficile car on connaît mal les constantes optiques de CrN_x ainsi que sa composition exacte. On est particulièrement sensible à cette non exactitude des constantes optiques vers 400 eV en raison de la proximité du seuil d'absorption Kα de l'azote ($h\nu \approx 409{,}9$ eV). Ainsi, lors des simulations de ces échantillons à des énergies proches de 400 eV, l'utilisation des épaisseurs déterminées via les mesures à 8 keV ne permet pas toujours de simuler correctement la position du pic de Bragg mesuré.

3.3.3 Conclusion sur l'étude

Nous avons donc effectué ici une étude détaillée de deux méthodes d'optimisation de la réflectivité de multicouches pour la fenêtre de l'eau basées sur du Cr/Sc. Nous avons notamment étudié l'influence de l'ajout de barrières en B_4C, en particulier l'influence de leur position (à une interface ou l'autre). Cette étude, jamais réalisée auparavant, a permis de montrer quel était le design optimal : $Cr/B_4C/Sc$ et non $B_4C/Cr/Sc$. Nous avons également montré que l'introduction d'azote au cours du dépôt du chrome permettait d'augmenter davantage la réflectivité. Par ailleurs, nous avons proposé pour la première fois de combiner l'utilisation de diazote pendant le dépôt et des barrières de B_4C à l'interface adaptée. Cette étude a montré un nouveau type de design optimal pour des multicouches dans la fenêtre de l'eau proche du seuil L du scandium, qui a permis d'atteindre une réflectivité de 23% proche de l'incidence normale. On peut espérer augmenter encore la réflectivité de telles multicouches en augmentant le nombre de périodes (la saturation ne semble pas atteinte) et/ou en limitant le phénomène de dérive de période lors du dépôt. Ceci a donc permis de sélectionner le design des revêtements multicouches à utiliser pour le microscope : il s'agira donc de multicouches $\mathbf{CrN_x/B_4C/Sc}$.

En revanche, la simulation de ces échantillons dans l'état actuel est difficile. On a pu voir qu'à la fois rugosité et dérive de la période sont des paramètres critiques pouvant faire chuter la réflectivité maximale atteinte. Il serait nécessaire de mieux connaître les constantes optiques de la couche de chrome formée en présence d'azote dans le bâti de dépôt et de réaliser des études complémentaires pour mieux modéliser la structure de ces échantillons.

Chapitre 4

Vers la réalisation et la métrologie des composants

Dans ce chapitre, nous allons appliquer les résultats obtenus aux chapitres précédents pour la réalisation de l'objectif de microscope. Dans un premier temps, nous nous intéresserons à la fabrication et la métrologie des surfaces optiques composant l'objectif de Schwarzschild ; nous présenterons notamment les techniques de fabrication et de métrologie des surfaces, puis les résultats qui ont été obtenus. Les surfaces optiques ont été fabriquées par Christian Beurthe et Sophie Coumar de l'atelier d'optique. Elles ont été mesurées par Raymond Mercier et Marc Roulliay. Nous mentionnerons ensuite le schéma mécanique pour tenir les miroirs du Schwarzschild, qui a été étudié et dessiné par André Guilbaud, de l'atelier de mécanique. Enfin, nous développerons les besoins et les tolérances pour les revêtements multicouches qui vont être utilisés sur le Schwarzschild.

4.1 Fabrication et métrologie des surfaces optiques pour le microscope

Nous allons présenter dans cette partie la fabrication et la métrologie des surfaces optiques destinées au Schwarzschild X pour le microscope. Dans un premier temps, nous présenterons les techniques de fabrication des surfaces utilisées pour le Schwarzschild, puis les différentes techniques de métrologie pour mesurer leur forme et leur rugosité. Nous terminerons cette section en présentant les résultats obtenus pour les surfaces fabriquées.

4.1.1 Fabrication des surfaces optiques au LCF

La fabrication d'une surface optique nécessite différentes étapes pour aboutir, à partir d'un bloc de matière brut, à un élément répondant aux exigences de l'utilisateur. Nous parlerons dans la suite brièvement de la fabrication de surfaces optiques sphériques à l'atelier d'optique, en s'appuyant sur les références [Dodin1984, Marioge2012], puis de la rectification ou l'asphérisation de surfaces par érosion ionique.

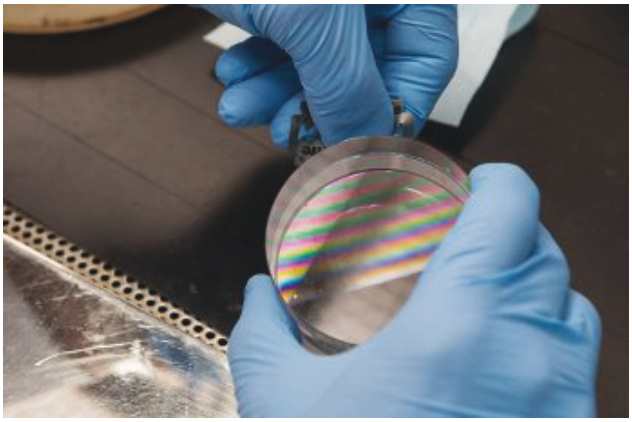
4.1.1.1 Superpolissage manuel à la poix à l'atelier d'optique

Une fois la matière (silice, Zerodur, etc.) choisie pour fabriquer l'élément optique désiré, l'opticien doit dans un premier temps découper le bloc de matière pour lui donner une forme relativement

proche de la forme souhaitée. L'élément sera ensuite érodé à la main sur un outil tournant en utilisant différentes qualités d'abrasif, dont le grain sera de plus en plus fin de manière à s'approcher de plus en plus près de la surface idéale tout en respectant les autres contraintes de fabrication de la pièce : rugosité la plus faible possible, parallélisme des faces, etc..

Ce procédé se compose de différentes étapes, la première étant la phase d'*ébauche*, à l'issue de laquelle l'élément va avoir des cotes proches de celles désirées. Le composant est usiné sur un tour grâce à un outil tournant en fonte sur lequel l'opticien insère un abrasif. L'outil utilisé doit avoir la forme complémentaire de la forme souhaitée pour la surface à usiner : soit plan pour une surface plane, soit sphérique (concave ou convexe) avec le bon rayon de courbure. Durant cette phase d'ébauche, différents abrasifs sont utilisés, dont les grains sont de plus en plus petits (de 150 μm à 40 μm). Vient ensuite la phase de *doucissage*, similaire à la phase d'ébauche, mais qui utilise des abrasifs de grains plus faibles (de 15 μm à 3 μm) et des outils en laiton. La dernière étape est l'étape de *polissage* et est l'étape la plus longue, car elle permettra, suivant l'expertise de l'opticien, d'aboutir à des erreurs de forme aussi faible que 1 nm RMS, ou des rugosités de l'ordre de l'angström [1] sur des diamètres de plusieurs dizaines de millimètres. Pour réaliser des optiques à ce très haut niveau de précision, l'opticien utilise une résine particulière : la poix, pour réaliser son polissoir.

(a)



(b)

FIGURE 4.1 – (a) Polissage à la poix d'une surface optique, et (b) visualisation des franges d'interférence entre une surface et le calibre associé.

Pendant la fabrication du composant optique, l'opticien vérifie si la forme de l'élément est conforme à celle souhaitée. Pour cela, il utilise un calibre (étalon dont il connaît précisément la forme et le rayon de courbure) de forme complémentaire à celle souhaitée qu'il superpose à la pièce en cours de fabrication. L'observation des franges d'interférence (voir Figure 4.1(b)) qui apparaissent entre la surface à contrôler de la pièce et le calibre permet de qualifier la forme de la pièce et quantifier le défaut qui apparaît le cas échéant. L'opticien peut alors continuer le polissage de la pièce pour réduire le défaut qu'il a observé. Cette méthode permet de visualiser des défauts jusqu'à $\lambda/40$.

Enfin, certains composants optiques peuvent nécessiter une étape de *débordage* (littéralement : pour ôter le bord). La débordeuse (représentée en Figure 4.2) dispose d'une meule au contact de laquelle on amène le bord de la pièce à déborder, collée à l'extrémité du mandrin (support non représenté sur la photographie). Le mandrin tourne autour de son axe, ce qui permet de réaliser des pièces à symétrie

1. On rappelle que 1Å = 0,1 nm

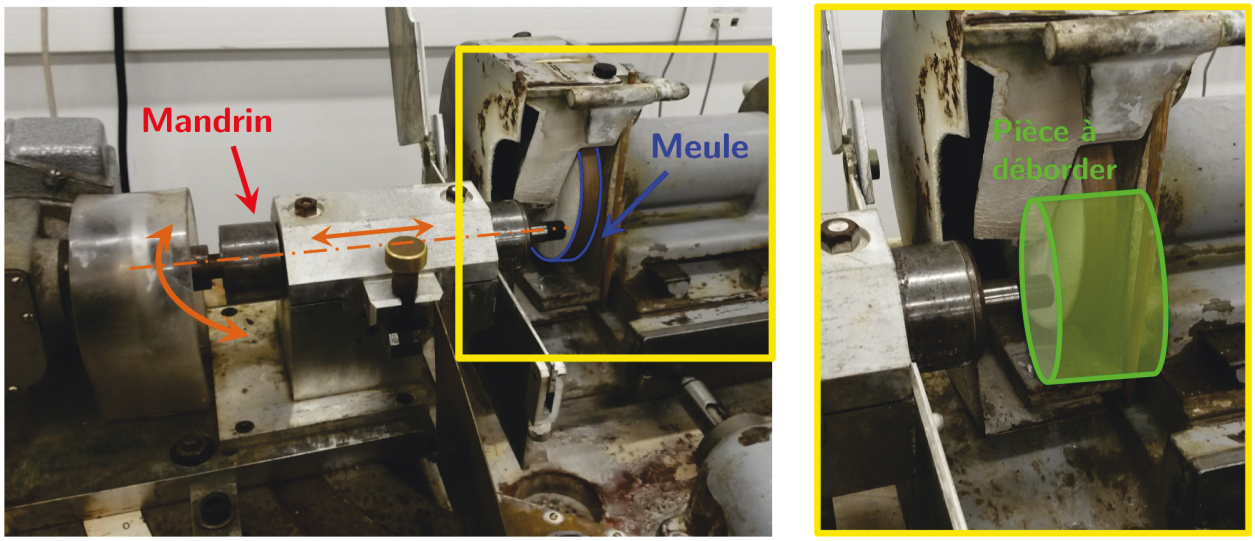


Figure 4.2 – La débordeuse : la pièce à déborder (voir le détail à droite) est collée sur un support (absent de la photographie) placé à l'extrémité du mandrin.

de révolution et permet également une translation le long de son axe. Il est possible de donner un angle à l'axe du mandrin par rapport à l'axe de la meule qui va usiner les bords de la pièce. Dans notre cas, cela sera utilisé pour créer la forme conique des bords du miroir secondaire.

4.1.1.2 Érosion ionique

Le groupe de recherche dispose d'un bâti d'érosion ionique [Mercier2008], permettant de réaliser des surfaces asphériques. Cette machine est représentée en Figure 4.3. Le substrat à éroder est bombardé par des ions argon à travers un masque. Les ions argon vont arracher des atomes du substrat. La quantité de matière enlevée au substrat va dépendre du temps d'exposition aux ions argon. La forme du masque est calculée de manière à ce que les ions argon érodent le substrat avec la forme désirée. Cette méthode a l'avantage d'éroder la surface du substrat selon la forme désirée sans dégrader sa rugosité.

Une surface asphérique est décrite par sa flèche qui peut s'écrire de la manière suivante en fonction de la distance au centre h :

$$Z(h) = \frac{h^2}{R + R\sqrt{1 - \epsilon\frac{h^2}{R^2}}} + A_4 h^4 + A_6 h^6 + A_8 h^8 + ... \tag{4.1}$$

où le terme $A_i h^i$ sera désigné par l'expression « terme d'ordre i ».

Dans le cas du Schwarzschild, nous n'avons pas besoin de surfaces asphériques (les deux miroirs composant le Schwarzschild sont sphériques). Néanmoins, l'érosion ionique peut être utile pour corriger les défauts de forme résiduels après polissage des substrats. Par exemple, l'aberration sphérique d'ordre 3 pourra être corrigée par l'introduction d'un coefficient d'asphérisation d'ordre 4 A_4 d'amplitude adaptée. Les erreurs de forme seront très faibles ; par conséquent, l'érosion que nécessitera un substrat sera très faible, de l'ordre de quelques nm tout au plus. Le temps d'érosion correspondant sera très court. L'érosion ionique pour corriger la forme des substrats ne sera utilisée que si elle apporte un gain significatif pour la forme du substrat. Dans le cas contraire, elle risque davantage de détériorer la forme du substrat.

(a)

(b)

FIGURE 4.3 – Le bâti d'érosion ionique : (a) schéma de principe (b) photo de la machine.

4.1.2 Métrologie des surfaces optiques

La fabrication de surfaces optiques à une précision nanométrique nécessite des moyens de mesure adaptés pour contrôler les surfaces à ce niveau de précision. Nous parlerons dans ce paragraphe des méthodes de métrologie utilisées pour le contrôle de forme des substrats fabriqués (interférométrie en lumière visible) et pour la mesure de la rugosité (profilomètre hétérodyne Zygo 5500). Dans la suite, le terme de « forme » d'une surface optique désignera sa surface à laquelle on a ôté le terme de courbure.

4.1.2.1 Mesure de forme par interférométrie en lumière visible

Le principe de cette méthode consiste en la mesure de la surface d'onde après réflexion sur la surface grâce à un interféromètre de type Fizeau à décalage de phase [Picart1995]. C'est une étape nécessaire et qui doit être faite parallèlement à la fabrication du substrat, afin de constamment mesurer ses défauts de forme pour, le cas échéant, les rectifier à l'atelier d'optique.

Un schéma de l'interféromètre est donné en Figure 4.4, ainsi que quelques photos en Figure 4.5 Il est composé d'une source laser HeNe fonctionnant à la longueur d'onde de 632,8 nm. Le principe de l'interféromètre consiste à faire interférer un front d'onde de référence, créé par réflexion sur une surface de référence, et le front d'onde issu de la réflexion sur l'optique que l'on souhaite mesurer. Les franges d'interférence sont formées dans le plan d'un dépoli tournant, et observées via un zoom sur une caméra CCD. La différence de phase mesurée permet de remonter à la forme de la surface. Le décalage de phase est réalisé grâce à une cale piézoélectrique qui va déplacer légèrement la référence lors d'acquisitions successives. La reconstruction de la phase se fait ensuite par l'algorithme de Carré [Carré1966, Picart1995], associé à une méthode des moindres carrés [Morgan1982] afin de réduire la sensibilité de l'algorithme au bruit. La mesure d'une phase a ainsi été faite avec 16 acquisitions.

Pour la mesure de surfaces sphériques, la référence utilisée est un objectif aplanétique fabriqué par la société Zygo. Le schéma du montage de la référence et de l'échantillon est donné en Figure 4.6. L'échantillon doit être positionné de sorte que le centre de courbure de la surface à mesurer coïncide

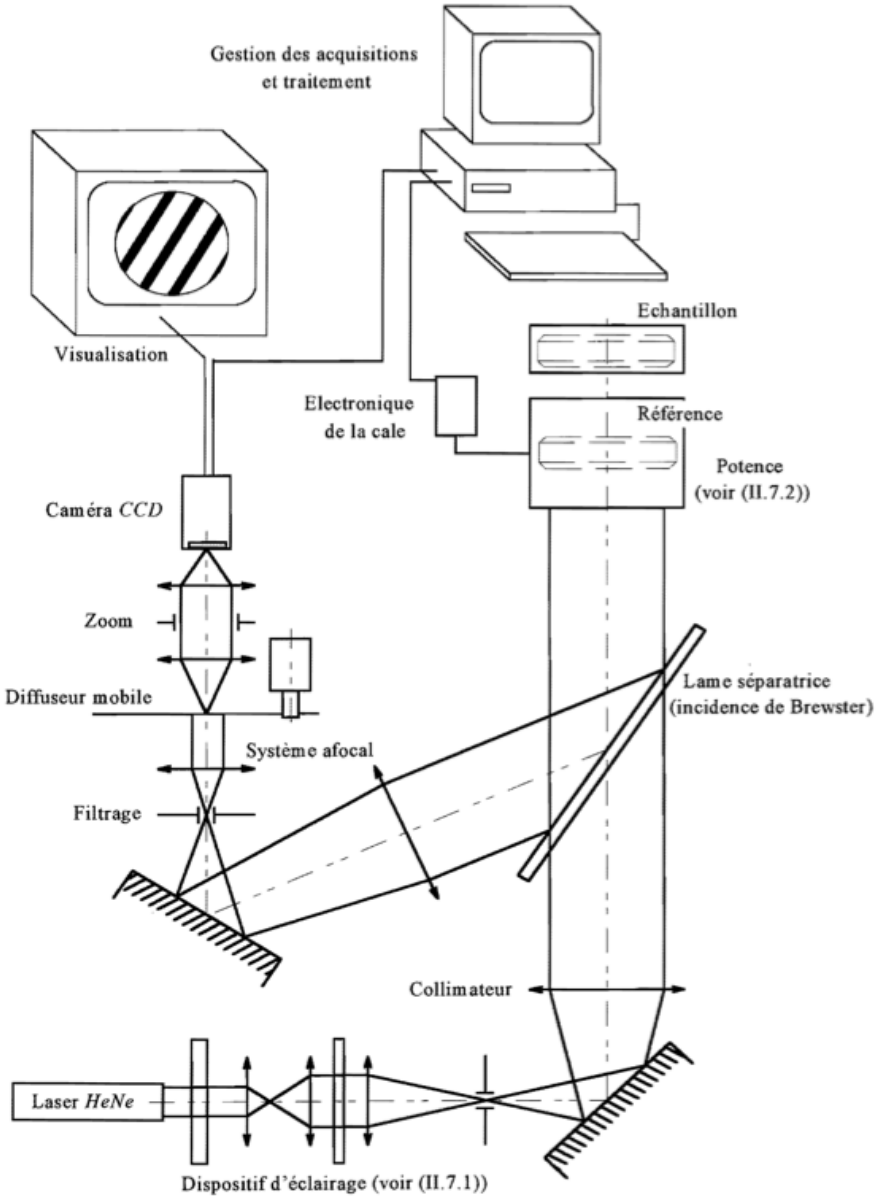
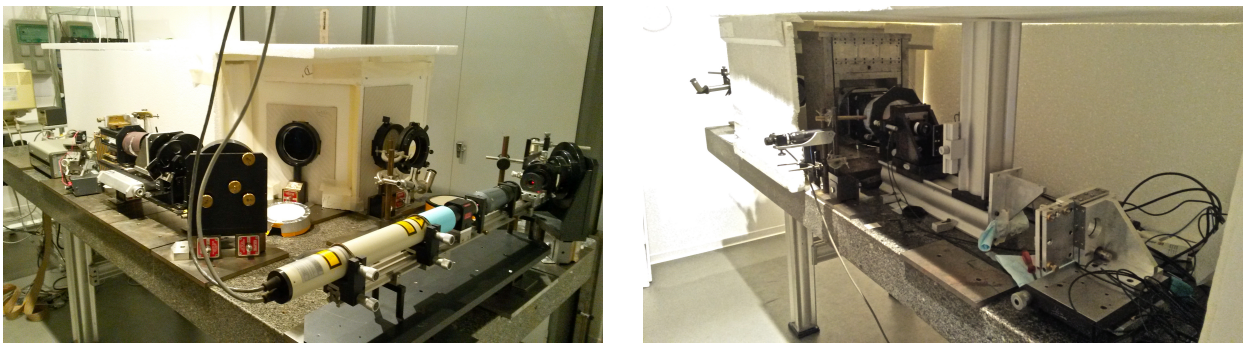


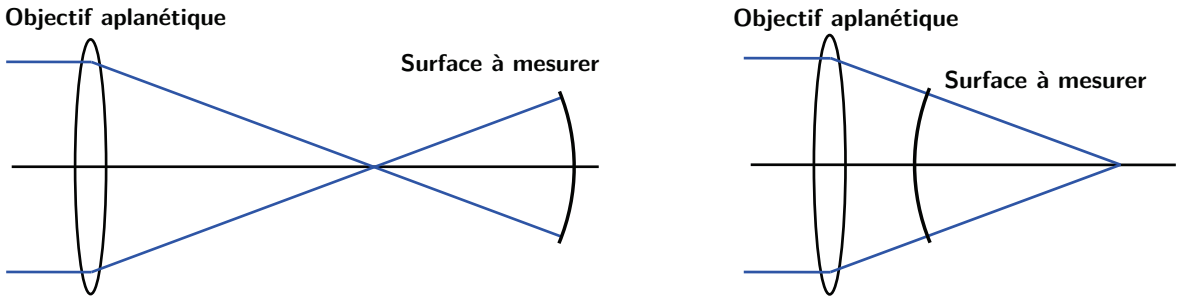
Figure 4.4 – Schéma de l'interféromètre de Fizeau à décalage de phase. Source : [Picart1995]



(a) (b)

Figure 4.5 – Photo de l'interféromètre de Fizeau : (a) laser avec la mise en forme du faisceau (à droite), et détection des franges après la lame séparatrice (à gauche) (b) banc pour accueillir la référence et l'échantillon à mesurer.

avec le foyer de la référence. Dans le cas où l'on souhaite mesurer une surface convexe, il faut que la distance frontale de l'objectif servant de référence soit plus grande que le rayon de courbure de la surface. Dans le cas où l'on veut mesurer une surface concave, il n'y a a priori pas de contrainte sur le choix de l'objectif de référence. Néanmoins, on veut éviter que la cavité (espace entre la référence et l'échantillon) soit trop grande pour limiter les sources de bruit (fluctuations de température, vibrations) [Picart1995]. Pour la mesure des miroirs primaires et secondaire, un objectif ouvert à F/1,5 a été utilisé.



(a) (b)

FIGURE 4.6 – Schéma de principe du contrôle de surfaces sphérique à l'interféromètre (détail sur l'ensemble {référence + échantillon}) : (a) mesure d'une surface concave (b) mesure d'une surface convexe

Il a été démontré [Picart1995] que l'interféromètre atteint une exactitude excellente, meilleure que $\lambda/300$ P-V [2] (soit environ 2 nm), ce qui est donc compatible avec la mesure de défauts à l'échelle nanométrique. Le bruit de l'interféromètre est également très faible, de l'ordre de $\lambda/3\ 000$ ou $\lambda/1\ 500$ suivant la méthode de dépouillement des interférogrammes.

La connaissance de la surface que l'on souhaite mesurer dépend cependant de la qualité de la référence. Afin de s'affranchir de cela mais également diminuer le bruit, la surface est mesurée dans plusieurs orientations : cela signifie que N mesures de phase sont réalisées en tournant autour de son axe le substrat à mesurer d'un même angle $\theta = \frac{2\pi}{N}$. Si l'on veut prendre 4 mesures de phase par exemple, il faudra tourner l'échantillon de $360/4 = 90°$ entre chaque mesure. Pour chaque orientation, la phase est calculée puis une rotation inverse lui est appliquée de sorte à se remettre à la position « $\theta = 0°$ ». Les différentes phases obtenues sont ensuite moyennées, ce qui permettra d'annuler certains termes d'aberrations dues à l'interféromètre et non à la surface mesurée :

— deux mesures à 0° et 180° permettront d'annuler des termes de coma du 3e ordre ;

— deux mesures à 0° et 90° permettront d'annuler des termes d'astigmatisme ;

— etc.

On peut généraliser de la façon suivante : plus le nombre d'orientations selon lesquelles la surface sera mesurée est élevé, plus la mesure s'affranchira des défauts de l'interféromètre et sera exacte.

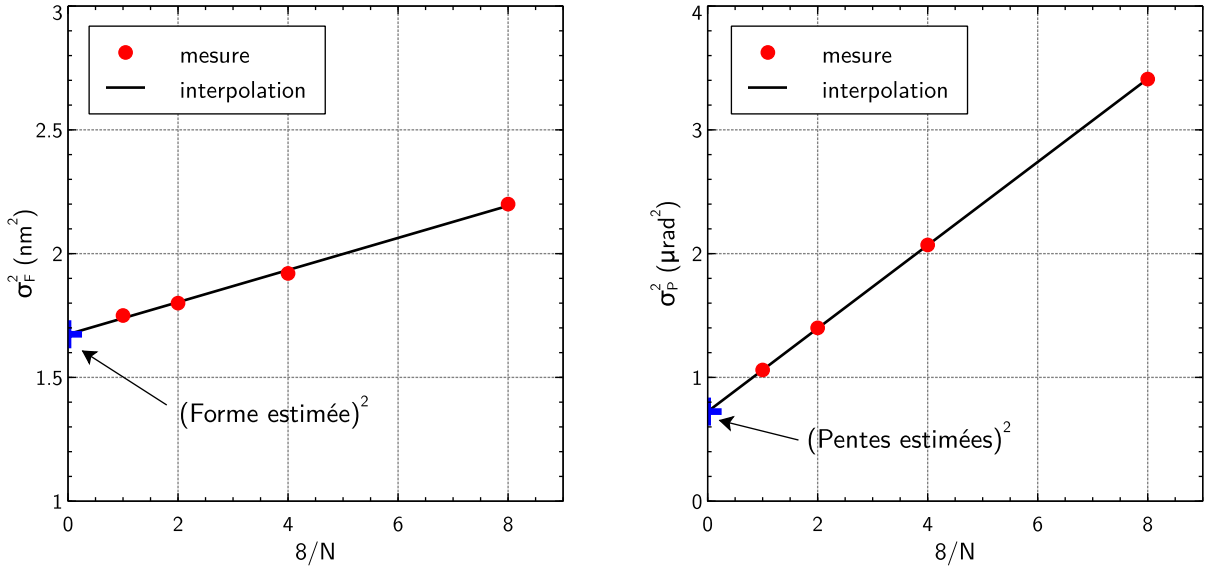
Dans le cadre de la métrologie des miroirs pour le Schwarzschild, il a été choisi de mesurer chaque miroir selon 8 orientations, soit une mesure tous les 45°. Pour cela, la tranche des miroirs primaires et secondaires ont été gravés de huit traits, repérant les positions des huit orientations séparées de 45°. Pour chaque mesure (i.e. une orientation pour un miroir), la phase a été mesurée 6 fois puis moyennée.

2. Le terme *P-V* signifie « pic-vallée ». Il désigne l'amplitude maximale entre le minimum et le maximum.

De cette mesure ont ensuite été déduits la forme RMS σ_F et la pente de la surface RMS σ_P. On va ensuite calculer la moyenne de ces deux quantités issues de différentes combinaisons :

1. les phases des huit orientations ;
2. les huit phases moyennes entre deux orientations séparées de 90° (par exemple : la moyenne entre $\theta = 0°$ et $\theta = 90°$, entre $\theta = 45°$ et $\theta = 135°$, etc.) ;
3. les deux phases issues de la moyenne entre 4 orientations « orthogonales » (soit : 0°/90°/180°/270° ou 45°/135°/225°/315°) ;
4. la moyenne entre les phases des huit orientations.

Le carré des formes RMS et pentes RMS ainsi obtenues est tracé en fonction de 8/N, N étant le nombre de phases moyennées donnant un σ_F ou σ_P : dans le cas n°1, N=1 ; pour le cas n°2, N=2 ; pour le cas n°3, N=4 et pour le cas n°4, N=8. Ces courbes sont représentées en Figure 4.7 pour le cas de l'un des miroirs primaires.



(a) (b)

FIGURE 4.7 – Carré de (a) la forme RMS et (b) la pente RMS en fonction de $8/N$ pour un miroir.

Dans les deux cas, la courbe de σ_F^2 ou σ_P^2 en fonction de 8/N est une droite. Au fur et à mesure que l'on moyenne les phases, le bruit est réduit et l'on diminue également l'influence des imperfections dues à l'interféromètre (la référence notamment). Ainsi, plus N est grand, plus σ_F^2 ou σ_P^2 est faible. On suppose que si l'on peut faire une infinité de mesures, on pourrait obtenir une valeur dénuée des aberrations résiduelles de l'interféromètre et aboutir à la valeur en $\frac{8}{N} = 0$. Pour la suite, le terme de pentes estimées ou forme estimée désignera l'ordonnée à l'origine de telles courbes et sera donc considérée comme les pentes ou la forme réelle du miroir mesuré.

L'interféromètre permet également la mesure de **rayons de courbure**. Pour cela, il faut repérer la position de la surface dans deux cas :

— le centre de courbure de la surface coïncide avec le foyer de la référence ;

— le sommet de la surface coïncide avec le foyer de la référence.

La position de la surface dans ces deux cas est repérée grâce à un interféromètre laser. Le rayon de courbure est la différence entre les deux valeurs. En pratique (voir la Figure 4.8), pour repérer le

centre de courbure ou le sommet de la surface, il faut chercher à s'approcher de la teinte plate (peu de franges sur l'interférogramme). Le pointé de la position de ces deux points n'est donc pas très précise. Afin d'améliorer la précision du positionnement de ces deux points, on choisit de mesurer l'intérférogramme un peu avant et un peu la position du sommet et du centre de courbure. Quelques franges sont observées sur l'interférogramme : il est possible d'en déduire la courbure du front d'onde, et donc la distance par rapport au point cherché (sommet ou centre de courbure). On peut ainsi mesurer le rayon de courbure d'une surface avec une précision de moins d'un micron.

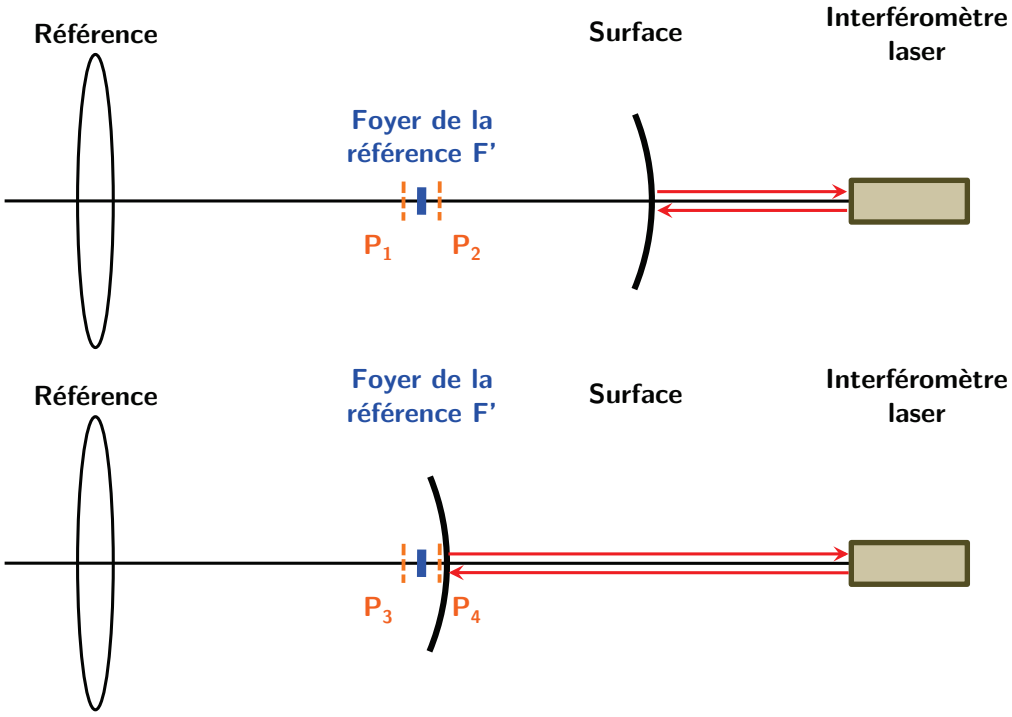


FIGURE 4.8 – Schéma du procédé de mesure du rayon de courbure d'une surface : le front d'onde est mesuré lorsque le centre de courbure de la surface est placé au point P_1, puis en P_2, ce qui permet de repérer la position de l'échantillon telle que le centre de courbure de la surface est au foyer F' de la référence. On procède de même pour repérer la position du sommet de la surface : on mesure les interférogrammes lorsque le sommet est en P_3 puis P_4 et on en déduit la position de l'échantillon lorsque le sommet de la surface coïncide avec F'. Le rayon de courbure est la distance entre les deux positions estimées.

4.1.2.2 Mesure de la rugosité

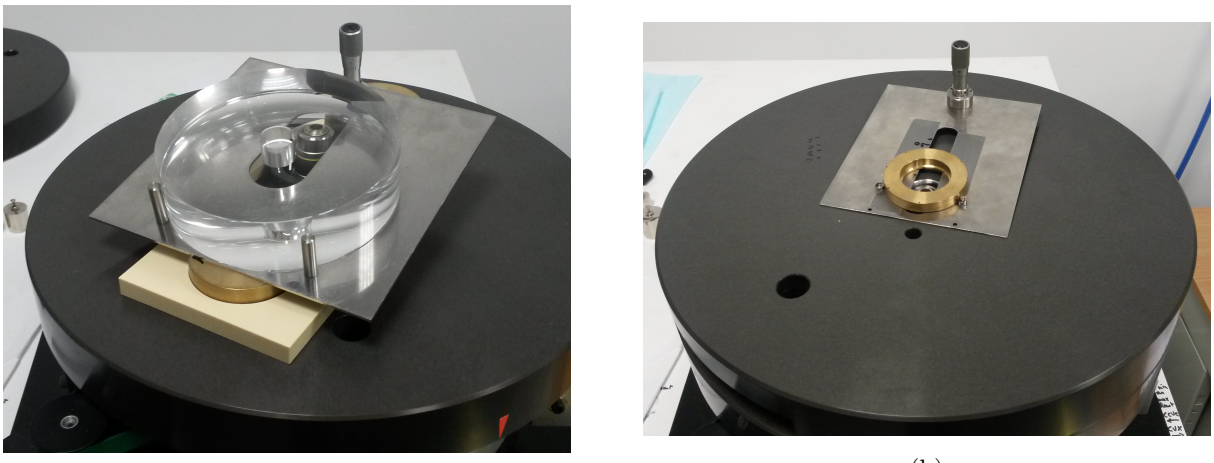
Au LCF, les mesures de rugosité sont faites grâce à un profilomètre hétérodyne Zygo 5500, qui peut mesurer des fréquences spatiales de quelques mm^{-1} à quelques centaines de mm^{-1}. Le profilomètre Zygo 5500 utilise comme source un laser He-Ne émettant deux longueurs d'onde proches de polarisations perpendiculaires. Les deux polarisations, séparées par un prisme de Wollaston, se focalisent grâce à un objectif de microscope sur l'échantillon à étudier en deux points distants d'environ 0,2 mm. L'échantillon est placé sur un plateau tournant sur coussin d'air. Un des deux faisceaux est focalisé sur la surface à étudier au niveau de l'axe de rotation de l'échantillon ; l'autre, étant décalé légèrement par rapport au premier faisceau, va décrire un cercle sur l'échantillon de circonférence 1 mm. Les deux faisceaux, après réflexion sur l'échantillon, vont interférer ensemble. Le faisceau qui se focalise sur l'axe

de rotation sert de référence ; les interférences mettront donc en évidence toute différence de phase entre les deux faisceaux, et donc toute variation de hauteur sur le trajet du second faisceau. On donne quelques caractéristiques techniques du profilomètre hétérodyne Zygo 5500 en Table 4.1. Le dispositif de mesure est représenté en Figure 4.9.

Table 4.1 – Caractéristiques techniques du profilomètre hétérodyne Zygo 5500

Fréquences spatiales accessibles	De 1 mm^{-1} à 500 mm^{-1}
Plage de mesure verticale	De 0,01 nm à 150 nm P.V. en rugosité
Bruit statique de mesure	$\approx$ 5 pm
Diamètre du faisceau	$\approx$ 2,0 μm
Échantillonnage	1,0 μm
Répétabilité verticale	$\leq$ 0,01 nm RMS ou 2% de la valeur RMS
Longueur de balayage	1,0 mm de circonférence
Vitesse de balayage	30 secondes/tour

Nous avons vu plus tôt que le diamètre du miroir primaire est relativement grand (110 mm sur la partie sphérique) avec une flèche non négligeable (7,3 mm). Il a été nécessaire d'adapter le montage mécanique du plateau tournant du profilomètre afin de permettre la mesure de la rugosité pour différents points répartis dans la zone utile pour tous les miroirs primaires.



(a) (b)

Figure 4.9 – Montage de mesure de la rugosité (a) du miroir primaire (b) du miroir secondaire (le miroir secondaire a été mesuré avant débordage et était placé dans la monture en laiton).

4.1.3 Fabrication et métrologie des miroirs pour le Schwarzschild

Nous présentons dans cette section les différentes étapes de fabrication et de métrologie des surfaces optiques composant le futur Schwarzschild. On définit dans un premier temps le cahier des charges précis pour le polissage des surfaces à l'atelier d'optique (cotes, matériau à utiliser, nombre de substrats à fabriquer, etc.). Nous présenterons ensuite les résultats obtenus ainsi qu'un indice sur le choix des surfaces qui seront sélectionnées pour le Schwarzschild final.

4.1.3.1 Cahier des charges pour le polissage des surfaces optiques

Suite au design optique défini au Chapitre 2, le rayon de courbure des deux miroirs a été défini. Il reste à décider des cotes complètes des deux miroirs pour leur fabrication à l'atelier d'optique. Il faut notamment déterminer : les diamètres physiques des deux miroirs, leur épaisseur, le diamètre du trou du miroir primaire. On doit aussi définir le niveau de qualité de surface requis (forme et rugosité).

Le **miroir primaire** a un diamètre utile de 83 mm. Lors du polissage d'une surface optique, il est très difficile d'obtenir une bonne forme jusqu'aux bords de la pièce, dont les bords peuvent souvent être « rabattus » (bord trop érodé) ou « relevés » (bord pas assez érodé). Or, on a vu qu'il est critique d'avoir la forme la meilleure possible sur la surface utile des deux miroirs du Schwarzschild. Le diamètre physique du miroir sera donc plus grand que nécessaire de manière à garder une marge dans le cas où il y a des défauts (rabat ou relevé) aux bords. Nous avons choisi un diamètre physique de 114 mm pour le miroir primaire, ce qui laisse environ 15 mm de marge au bord. Le schéma mécanique pour la tenue du miroir primaire n'étant pas défini à ce stade, le diamètre de 114 mm inclut un plat de largeur 2 mm au bord qui peut simplifier la tenue du miroir primaire suivant le schéma mécanique choisi. Le diamètre de la partie sphérique du miroir sera donc de 110 mm. Il y aura également un chanfrein de 0,5 mm au bord pour ne pas avoir d'arrête vive.

De manière analogue, le **miroir secondaire** a un diamètre utile de 17,3 mm. Pour ce miroir, on ne peut pas prendre de marge très élevée sur le diamètre, puisque le miroir secondaire crée l'obturation du Schwarzschild : plus il est grand, moins le détecteur collectera de photons. Nous avons calculé qu'en choisissant une marge de 0,5 mm au bord (diamètre de 18,3 mm), le flux en sortie du Schwarzschild ne sera diminué que de 2,7%, et en choisissant une marge de 1 mm au bord (diamètre de 19,3 mm), le flux en sortie du Schwarzschild ne sera diminué que de 5,5% ce qui reste acceptable et laisse une marge suffisante. Le diamètre exact sera affiné par la suite en fonction de ce qu'il est possible de faire au niveau du débordage du miroir. Le miroir secondaire devra également disposer d'un chanfrein pour éviter les arêtes vives.

En pratique, les miroirs ont une certaine épaisseur. Nous avons choisi pour le miroir primaire une épaisseur au bord de 30 mm. Compte tenu de son diamètre de 110 mm sur la partie sphérique et de son rayon de courbure de 210 mm, sa flèche est donc de 7,3 mm, ce qui donne une épaisseur au centre de 22,7 mm. On a dit auparavant que le miroir secondaire constitue l'obturation du Schwarzschild. Il devra donc être réalisé dans une portion de cône afin de ne pas couper davantage de rayons (voir Figure 4.10). Le demi-angle du cône doit être au minimum :

$$\gamma = \arctan\left(\frac{\phi_2}{2 \times \left(\overline{AC} - R_2\right)}\right) \approx 4° \tag{4.2}$$

En pratique, le miroir secondaire sera fabriqué dans un diamètre beaucoup plus grand que spécifié (30 mm) puis il sera débordé de manière à la ramener au diamètre désiré tout en lui donnant une forme de cône avec l'angle souhaité.

Enfin, le miroir primaire doit être percé pour laisser passer les rayons après réflexion sur le miroir secondaire. Le diamètre intérieur de la zone utile sur le miroir primaire est défini par le rayon passant au bord du miroir secondaire. Ce rayon arrive dans le plan du miroir primaire avec une hauteur h_1 :

$$h_1 = \frac{\phi_2 \times \overline{AS_1}}{2 \times \overline{AS_2}} \tag{4.3}$$

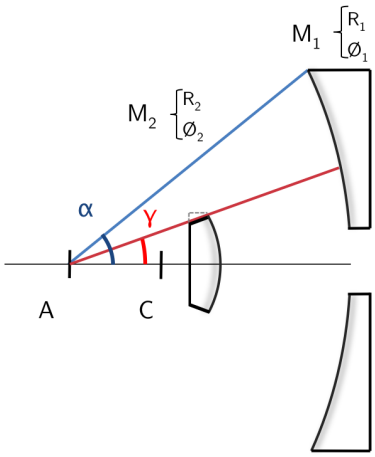


FIGURE 4.10 – Forme du miroir secondaire M_2.

Après réflexion sur le miroir secondaire, le rayon passant en bord de la zone utile arrive dans le plan du miroir primaire avec un hauteur :

$$h_1' = \frac{\phi_2 \times \overline{S_1 A_2}}{2 \times \overline{S_2 A_2}} \tag{4.4}$$

Le diamètre du trou doit donc être compris entre $2 \times h_1 = 34{,}7$ mm et $2 \times h_1' = 15{,}4$ mm. Nous avons choisi un diamètre de trou le plus faible possible : de manière analogue au choix du diamètre physique, il est nécessaire de garder une marge suffisamment confortable entre la zone utile et le bord du trou car des défauts de forme seront présents près du trou. Son diamètre sera donc de 16 mm. On retrouve en Figure 4.11 un schéma des deux miroirs.

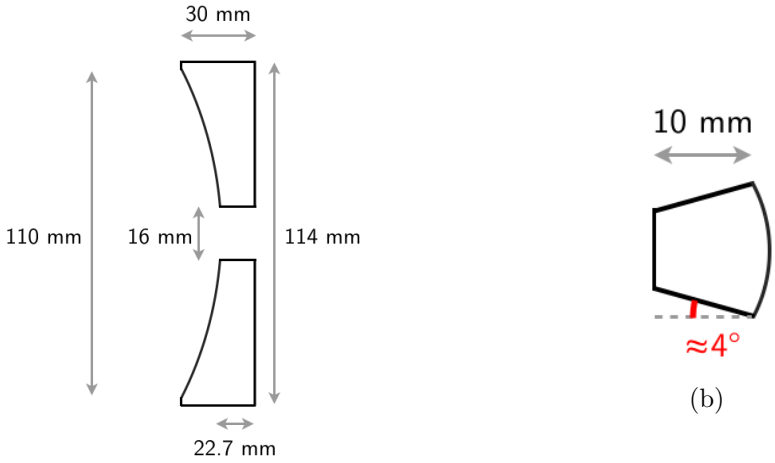


FIGURE 4.11 – Schéma des miroirs à fabriquer par l'atelier d'optique.

Plusieurs miroirs primaires et secondaires ont été fabriqués. Ceci nous permet de choisir les substrats ayant les meilleurs formes et les plus faibles rugosités, ainsi que d'optimiser l'appairage des miroirs. Par ailleurs, il sera plus confortable d'avoir des miroirs supplémentaire en cas de problème durant les différentes étapes de fabrication de l'objectif de Schwarzschild (polissage des surfaces, métrologie, fabrication des revêtements multicouches, collage pour l'installation dans la monture) en raison des risques de casse à chaque étape. Nous avons choisi de fabriquer cinq miroirs primaires et sept miroirs secondaires, la fabrication des miroirs secondaires étant plus « dangereuse », car elle requiert

une étape supplémentaire de débordage.

Nous avons vu auparavant que les erreurs de forme peuvent avoir un effet désastreux sur la résolution du microscope à une longueur d'onde de 3,14 nm. Il est donc primordial que ces erreurs de forme soient les plus faibles possible. On s'intéressera plus particulièrement aux pentes de la surface. Les erreurs de forme engendrant de très fortes déformations du front d'onde devant la longueur d'onde, on considère que l'on est dans le régime géométrique : la diffraction a une influence négligeable. On considère alors que les dimensions de la tache image (donc la résolution) sont principalement décrites par les impacts dans le plan image des différents rayons traversant le système (voir aussi au Chapitre 2, paragraphe 2.1.2). Les rayons étant perpendiculaires à la surface d'onde, l'étude des pentes de celle-ci est donc particulièrement adaptée pour quantifier la qualité des surfaces optiques. Les substrats polis à l'atelier d'optique devront donc avoir des pentes les plus faibles possibles (quelques μrad).

Nous avons vu au Chapitre 1 que l'on pouvait calculer le TIS [Bennett1961], c'est-à-dire la proportion de lumière diffusée, en fonction de la rugosité RMS de la surface σ_R, de l'angle d'incidence ϕ et de la longueur d'onde λ :

$$TIS = 1 - \exp\left[-\left(\frac{4\pi\sigma_R \cos\phi}{\lambda}\right)^2\right] \tag{4.5}$$

Quelques valeurs sont données en Table 4.2 pour la longueur d'onde d'utilisation ($\lambda = 3{,}14$ nm).

TABLE 4.2 – *Total Integrated Scatter* calculé à la longueur d'onde d'utilisation du microscope et pour différentes valeurs de la rugosité RMS σ_R de la surface et pour différentes valeur de l'angle d'incidence ϕ.

TIS	Rugosité RMS de la surface σ_R (nm)					
calculé	0,05	0,1	0,15	0,2	0,25	0,3
ϕ=0°	0,039	0,148	0,303	0,473	0,632	0,763
ϕ=5°	0,039	0,148	0,303	0,473	0,632	0,763
ϕ=10°	0,038	0,148	0,303	0,473	0,632	0,763

Les résultats de la Table 4.2 montrent qu'il est absolument primordial d'avoir une rugosité la plus faible possible. En effet, on voit que pour une rugosité du substrat de l'ordre de 0,2 nm seulement, près de la moitié du flux est perdu par diffusion. Par ailleurs, un revêtement multicouche doit être déposé sur les miroirs primaire et secondaire. Ce revêtement multicouche aura lui-même une certaine rugosité en surface, qui dépendra en partie de la rugosité qui se sera accumulée au cours du dépôt du revêtement multicouche. Cette rugosité en surface a été estimée en général à environ 0,3 mm pour les études de multicouches réalisées dans le cadre de cette thèse (voir le Chapitre 3). Il faudra alors déterminer si la rugosité du substrat a une forte influence ou non sur la réflectivité du revêtement multicouche, ou si la rugosité en surface dépendra principalement du revêtement.

En ce qui concerne le matériau des substrats, nous avons la possibilité de choisir du Zerodur, matériau à très faible coefficient de dilatation thermique, ou de la silice. Le faible coefficient de dilatation thermique du Zerodur est permis grâce à une composition en deux phases : une phase vitreuse de coefficient de dilatation positif et une phase cristalline composée de cristaux de quartz à coefficient de dilatation thermique négatif. Cette « double » composition fragilise cependant la tenue au flux de rayons X du Zerodur : il a été montré que le Zerodur subit des dégradations lorsqu'il est exposé à du rayonnement X [Takacs1997].

Par ailleurs, l'atelier d'optique a plus souvent eu l'occasion de travailler avec de la silice que du Zerodur. En particulier, les records de forme et de rugosité ont été obtenus sur de la silice. On a vu que ces deux aspects sont primordiaux du fait de la très courte longueur d'onde d'utilisation du Schwarzschild. Nous avons donc choisi d'utiliser de la silice pour les substrats des miroirs du microscope.

Le Schwarzschild est destiné à aller sous vide : cela nécessite que le plus de surfaces possible soient polies. Par ailleurs, si la tranche des substrats reste dépolie, cela crée des contraintes et risque de déformer la surface d'intérêt. Polir toutes les faces des substrats permettrait alors de relâcher les contraintes et garantir la meilleure qualité de surface possible. Ainsi, toutes les tranches et faces arrières des miroirs primaires et secondaires doivent être polies, ainsi que l'intérieur du trou des miroirs primaires. En revanche, la face arrière du miroir secondaire sera partiellement dépolie afin d'améliorer l'adhérence de la colle pour le maintien du miroir sur sa monture (voir la section 4.2).

4.1.3.2 Résultats : les miroirs primaires et secondaires

Afin d'arriver à des qualités de surfaces les meilleures possible pour les substrats, la procédure de polissage a été très longue, nécessitant plusieurs mois d'allers-retours entre la métrologie et l'atelier d'optique pour rectification des surfaces. Le polissage des miroirs primaires a été démarré en novembre 2015 et terminé début mai 2016. Le polissage des miroirs secondaires a été démarré début mai 2016 et terminé fin septembre 2016. On donne notamment en Figure 4.12 une évolution de la forme RMS mesurée en fonction du temps pour les différents substrats primaires (Figure 4.12(a)) et secondaires (Figure 4.12(b)). Nous allons décrire dans ce paragraphe les résultats obtenus à l'issue de cette longue étape de polissage pour les substrats des miroirs primaires et secondaires.

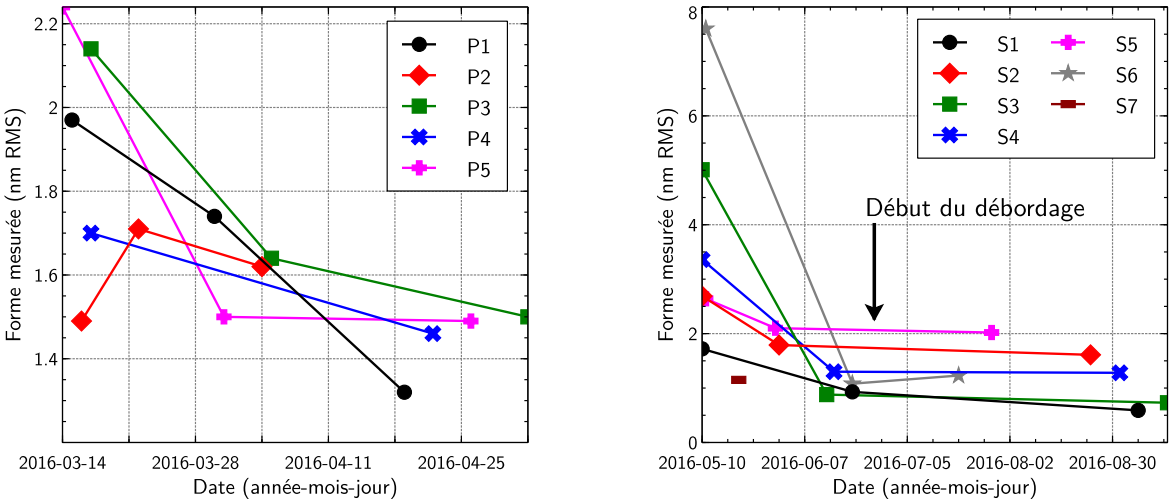
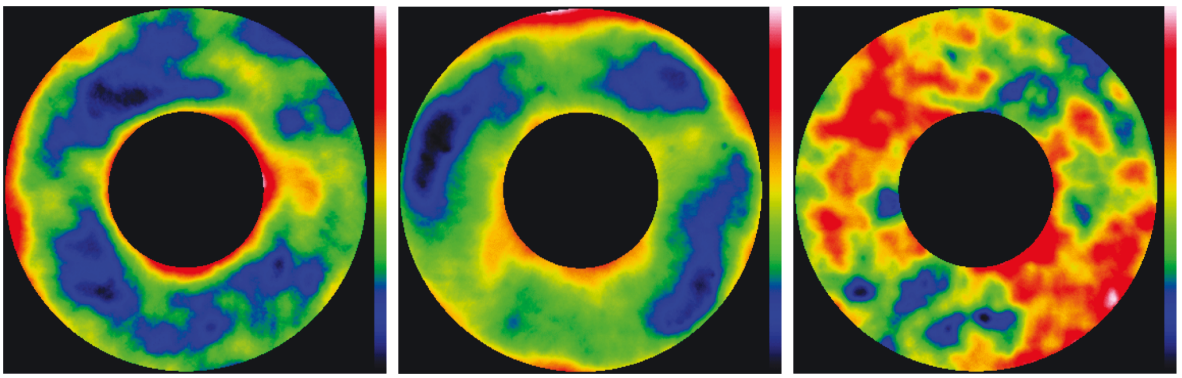


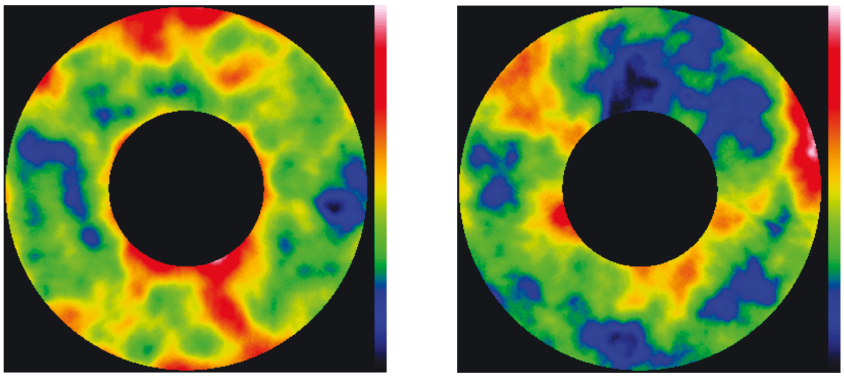
FIGURE 4.12 – Forme RMS mesurée en fonction du temps pour les substrats dédiés : (a) au miroir primaire, et (b) au miroir secondaire.

4.1.3.2.1 Résultats pour les substrats du miroir primaire

Les résultats finaux des miroirs primaires sont regroupés en Table 4.3. On donne également la surface mesurée des substrats en Figure 4.13 ainsi que la mesure de leurs rayons de courbure (voir Table 4.4). La précision sur la mesure des rayons de courbure a été estimée à ± 3 μm.



(a) Échelle : 9 nm P-V (b) Échelle : 11,5 nm P-V (c) Échelle : 9 nm P-V



(d) Échelle : 11 nm P-V (e) Échelle : 10 nm P-V

FIGURE 4.13 – Surface mesurée des substrats : (a) P1, (b) P2, (c) P3, (d) P4 et (e) P5. La surface est affichée pour un diamètre compris entre 36 mm et 84 mm.

Tous les substrats montrent une excellente qualité de surface, avec des formes RMS approchant le nanomètre ainsi que de très faibles rugosités inférieures à 1Å. La Table 4.3 donne également les pentes RMS du front d'onde après réflexion sur le miroir primaire. On peut en déduire une estimation du rayon RMS de la tache ρ_{RMS} ramenée dans le plan objet, en fonction des pentes du front d'onde estimées ϵ_{RMS} par la relation :

$$\rho_{RMS} = \epsilon_{RMS} \times AS_1 \tag{4.6}$$

avec $AS_1 = 270{,}22$ mm la distance entre le plan objet et le miroir primaire. Pour comparer la qualité de deux substrats, il faut donc comparer leurs pentes RMS. Ainsi, ce sont les substrats P1, P2 et P5 qui semblent être les meilleurs du point de vue des pentes RMS. Si l'on calcule le rayon de la tache dans le plan objet pour ces trois substrats, on obtient :

— pour P1 : $\rho_{RMS}^{P1} = 0{,}23$ μm ;
— pour P2 : $\rho_{RMS}^{P2} = 0{,}23$ μm ;
— pour P5 : $\rho_{RMS}^{P5} = 0{,}20$ μm.

Il est aussi fortement souhaitable d'avoir une rugosité la plus faible possible : les meilleurs substrats correspondant à ce critère seraient alors plutôt P1 et P4.

Afin de déterminer quels seraient les meilleurs miroirs qui permettraient d'avoir à la fois les pentes RMS et la rugosité les plus faibles possible, un critère a été utilisé : pour chaque miroir, on a calculé le quotient (1-TIS)/pentes estimées. Maximiser cette valeur permet donc de choisir les substrats ayant à la fois une faible rugosité (1-TIS élevé) et de faibles pentes. Les meilleurs miroirs seraient donc P1 et P5. Il reste cependant à déterminer si ce critère est pertinent. En particulier, la rugosité n'est

Table 4.3 – Forme et rugosité mesurées sur les substrats pour le miroir primaire. Les formes sont exprimées en nm RMS. Les pentes sont les pentes du front d'onde après réflexion sur la surface et sont exprimées en μrad RMS. Le *TIS* est calculé pour 2 miroirs de rugosité identique égale à celle mesurée.

Substrat	**P1**	**P2**	**P3**	**P4**	**P5**
Forme (nm RMS)	1,32	1,62	1,50	1,46	1,49
Pentes (μrad RMS)	1,03	1,03	1,19	1,09	0,95
Pentes estimées	0,85	0,86	1,01	0,92	0,74
Rugosité (Å)	0,50	0,82	0,75	0,45	0,75
TIS (2 miroirs)	7%	18%	15%	6%	15%
(1-TIS)/Pentes est.	1,09	0,95	0,71	1,02	1,15
Forme corrigée degré 4 (nm RMS)	1,15	1,30	1,50	1,40	1,43
Pentes corrigées du degré 4	0,93	0,76		1,01	0,92
Pentes estimées corr. du degré 4	0,73	0,52		0,83	0,71
Gains	13,8%	40,1%		9,6%	4,1%
Coefficient du degré 4 A_4 (mm^{-3})	$4{,}4 \cdot 10^{-12}$	$7{,}1 \cdot 10^{-12}$	$3{,}4 \cdot 10^{-13}$	$4{,}0 \cdot 10^{-12}$	$2{,}1 \cdot 10^{-12}$
(1-TIS)/Pentes estimées	1,27	1,59	0,84	1,14	1,20

Table 4.4 – Rayon de courbure mesuré des substrats pour le miroir primaire (précision : $\pm$ 3 μm).

Substrat	P1	P2	P3	P4	P5
Rayon de courbure mesuré (mm)	210,008	210,005	210,009	210,007	210,003
Nombre de mesures	4	6	6	6	12
P-V (μm)	1,2	2,1	2,3	0,9	1,8
Écart-type (μm)	0,44	0,82	0,95	0,32	0,51

peut-être pas un facteur aussi critique que les pentes RMS (les rugosités de tous les substrats sont en dessous de 1 Å). Il faudrait faire une étude de revêtements multicouches identiques déposés sur des substrats superpolis de rugosités légèrement différentes, et déterminer si ces différences de rugosités influent notablement sur la réflectivité de la multicouche. Dans le cas contraire, le substrat choisi doit être celui dont les pentes sont les plus faibles.

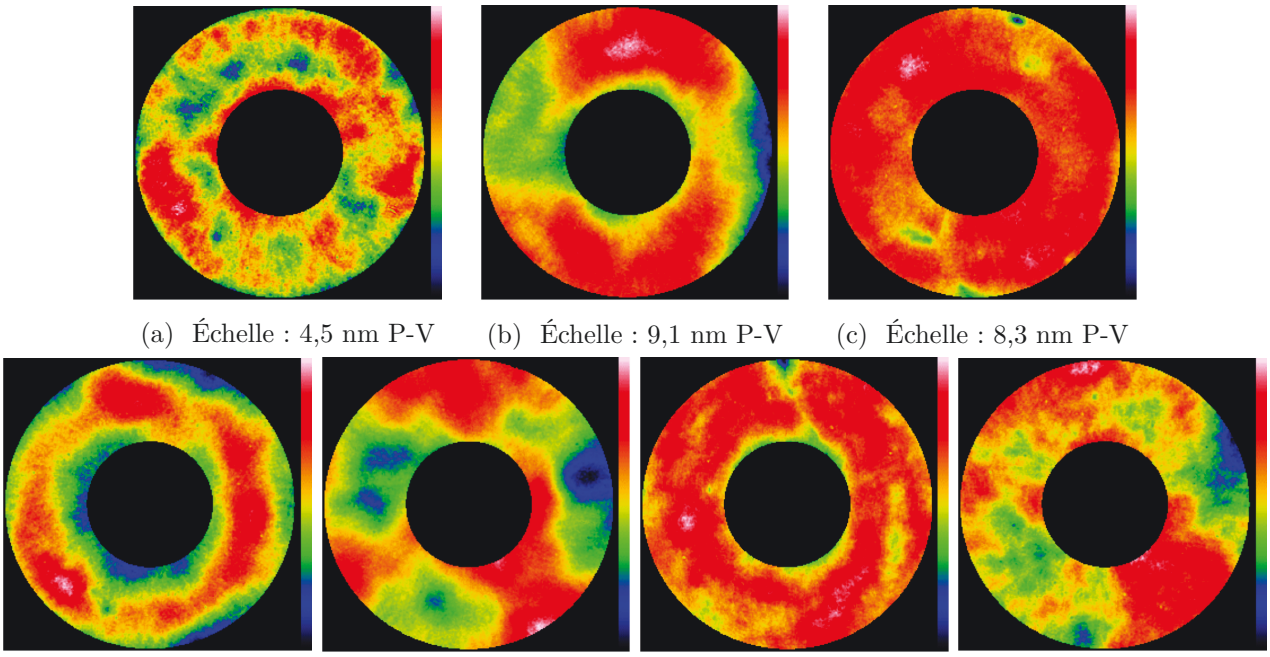
Utilisation de l'érosion ionique

On a vu qu'il est également possible de corriger la forme d'une surface en utilisant l'érosion ionique. Si l'on veut corriger le mieux possible les défauts d'ordre pas trop élevé des substrats, chaque substrat devra avoir son propre masque qui tiendra compte de ses propres défauts. Cette méthode serait alors onéreuse, longue et difficile à mettre en oeuvre. Une alternative serait d'utiliser un masque qui ne corrige qu'un ordre spécifique, en introduisant par exemple un terme A_4h^4 d'amplitude A_4 de sorte à réduire le défaut de forme correspondant. L'adaptation pour chaque miroir se ferait alors en variant la durée d'érosion pour chaque substrat en fonction de la correction dont il aurait besoin. En théorie, il faudrait deux masques : un pour corriger les défauts d'ordre 4 positifs, le second pour les défauts d'ordre 4 négatifs. En pratique, tous les miroirs primaires fabriqués présentent une amplitude du degré 4 de signe identique (voir Table 4.3) ; un seul masque serait donc suffisant pour corriger le degré 4 de tous les miroirs primaires (si nécessaire). Pour certains cependant, cette amplitude est très faible :

l'érosion n'apporterait donc pas de gain réel. Il apparaît que le gain n'est notable que pour le substrat P2. Après érosion, ses pentes estimées devraient être de $\epsilon_{RMS} = 0{,}52$ μrad, ce qui donnerait lieu à un rayon RMS de la tache dans le plan objet de $\rho_{RMS}^{Corr\ d^\circ 4} = 140$ nm. Le gain en terme de résolution serait alors très important : sans l'érosion, le rayon RMS de la tache dans le plan objet serait de $\rho_{RMS} = 232$ nm. L'érosion devra malgré tout être très courte : le défaut de degré 4 a une amplitude de l'ordre de 20 nm, ce qui correspond à une durée d'érosion de l'ordre de 2 minutes.

4.1.3.2.2 Résultats pour les substrats du miroir secondaire

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats obtenus pour les substrats destinés au miroir secondaire du Schwarzschild. Sept substrats ont été polis sur un diamètre de 30 mm. Les surfaces mesurées des sept substrats sont présentées en Figure 4.14. On donne également en Table 4.5 les caractéristiques mesurées des différents substrats.



(a) Échelle : 4,5 nm P-V (b) Échelle : 9,1 nm P-V (c) Échelle : 8,3 nm P-V

(d) Échelle : 7,6 nm P-V (e) Échelle : 11,5 nm P-V (f) Échelle : 12,2 nm P-V (g) Échelle : 8,2 nm P-V

FIGURE 4.14 – Surface mesurée des substrats : (a) S1, (b) S2, (c) S3, (d) S4, (e) S5, (f) S6 et (g) S7. La surface est affichée pour un diamètre compris entre 7,6 mm et 17,32 mm.

Les substrats sont relativement semblables, mis à part le substrat S6 dont les pentes sont bien plus élevées que celles des autres substrats. Les rugosités mesurées sont également semblables pour tous les substrats. Le meilleur substrat du point de vue du critère « (1-TIS)/pentes estimées » serait donc S1 (qui a également les plus faibles pentes estimées et la plus faible rugosité). Les pentes RMS estimées de S1 correspondent à un rayon de tache dans le plan image de :

$$\rho'_{RMS} = \epsilon_{RMS} \times S_2 A_2 \approx 2{,}53\ \mu\text{m} \tag{4.7}$$

soit dans le plan objet :

$$\rho_{RMS} = \frac{\rho'_{RMS}}{|g_{Schw}|} \approx 126\ \text{nm} \tag{4.8}$$

Les substrats dédiés au miroir secondaire semblent donc bien compatibles avec une résolution de l'ordre de quelques centaines de nanomètres.

Table 4.5 – Forme et rugosité mesurées sur les substrats pour le miroir secondaire avant débordage, calculées sur une couronne de diamètre intérieur 7,5 mm et de diamètre extérieur 19 mm. Les formes sont exprimées en nm RMS. Les pentes sont les pentes du front d'onde après réflexion sur la surface et sont exprimées en μrad RMS. Le *TIS* est calculé pour 2 miroirs de rugosité identique égale à celle mesurée.

Substrat	**S1**	**S2**	**S3**	**S4**	**S5**	**S6**	**S7**
Forme (nm RMS)	0,63	1,53	0,78	1,24	2,03	1,29	1,26
Pentes (μrad RMS)	7,03	6,71	6,90	7,28	6,98	10,82	7,35
Pentes estimées	2,22	2,51	2,90	3,36	3,08	5,77	2,95
Rugosité (Å)	0,61	0,79	0,82	0,61	0,71	0,86	0,67
TIS (2 miroirs)	10%	16%	18%	10%	13%	19%	12%
(1-TIS)/Pentes est.	0,41	0,33	0,28	0,27	0,28	0,14	0,30

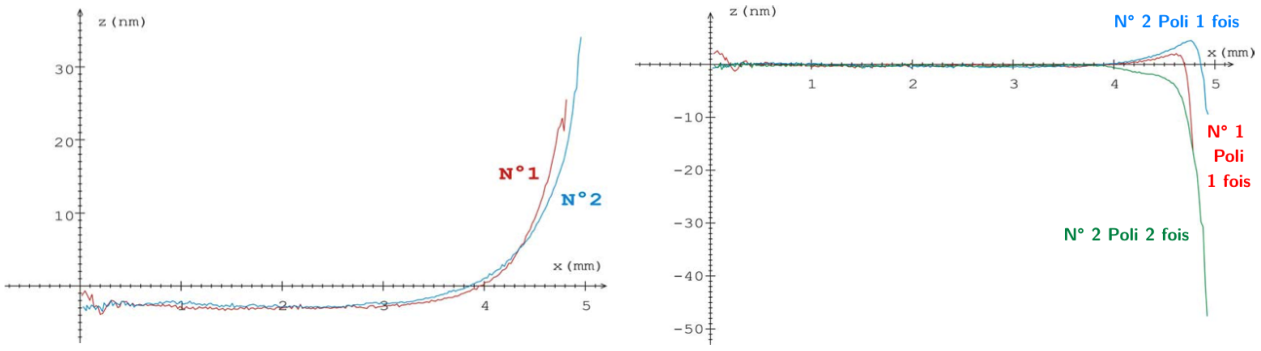
Procédure de débordage

Les substrats ont ensuite dus être débordés pour atteindre un diamètre physique le plus proche possible du diamètre utile. On rappelle que les substrats devaient également être débordés en une portion de cône dont le demi-angle est de 4°. Avant de réaliser le débordage de tous les substrats destinés au Schwarzschild, des tests ont été faits pour déterminer la procédure à suivre pour conserver la qualité des surfaces, et pour déterminer quel doit être le diamètre physique des substrats.

Les premiers tests de débordage effectués ont été faits en utilisant deux substrats de Zerodur de diamètre initial 25 mm et d'épaisseur 10mm. La face avant de ces substrats est convexe (rayon de courbure 257,6 mm) ; la face arrière est plane. Pour l'un des deux substrats, la face arrière a été dépolie. En effet, nous verrons (voir section 4.2) que la face arrière du miroir secondaire sera collée sur son support. Or, le fait que cette face soit dépolie serait plus favorable à la tenue de la colle. On a donc voulu étudier si la face arrière dépolie introduit des contraintes déformant la face avant de manière tolérable ou non.

Après le débordage de ces deux échantillons, on mesure un fort relevé pour les deux cas (voir Figure 4.15(a)). Le relevé semble proche pour les deux échantillons (l'amplitude est différente, mais les deux substrats n'ont pas été débordés au même diamètre). Les deux substrats ont ensuite été doucis puis polis sur le bord conique, ce qui a permis de bien diminuer l'amplitude du défaut au bord (voir Figure 4.15(b)). L'amplitude du défaut est de l'ordre de 2 à 4 nm, étalé sur un peu moins d'un millimètre au bord. Il serait donc préférable de décaler ce type de défaut en dehors de la zone utile, c'est-à-dire de conserver 1 mm de marge sur le rayon, ce qui correspondrait à un diamètre physique de 19,3 mm.

Afin d'affiner la procédure de débordage et de l'adapter aux substrats réels, le plus mauvais des sept substrats (S6) a été utilisé pour la seconde partie des tests. Ce substrat a été débordé à un diamètre de 19,3 mm. Il a ensuite été douci avec un abrasif dont la taille de grain descendait jusqu'à 9 μm dans un premier temps, puis 5 μm et enfin 3 μm. Les reprises du substrats s'effectuaient de la façon suivante : pour l'utilisation d'un abrasif donné (grain de taille 9 μm, 5 μm ou 3 μm), le bord était douci puis poli, ce qui réduisait le diamètre de la pièce d'une certaine quantité. Il a été observé que l'abrasif de grain de taille 9 μm permet de réduire les défauts aux bords jusqu'à une diminution du diamètre de 0,3 mm. Si l'on continue de l'utiliser ensuite (en diminuant le diamètre de plus de 0,3 mm), les défauts aux bords des substrats ne sont pas réduits de manière significative. Après les étapes de doucissage+polissage avec l'abrasif de grain de taille 5 μm puis 3 μm, l'amplitude des défauts a été



(a) (b)

FIGURE 4.15 – Profil moyens des deux échantillons : (a) avant polissage de la tranche, (b) après polissage. Le substrat n°2 est celui dont la face arrière a été dépolie.

réduite à moins de 2 nm, et les défauts s'étalaient sur une distance de l'ordre de 0,6 mm du bord.

La procédure utilisée pour les autres substrats est donc la suivante :

1. le substrat est débordé jusqu'à un diamètre de 19,1 mm ;
2. il est douci avec l'abrasif de grain de taille 9 μm pour ôter environ 0,3 mm sur le diamètre ;
3. il est douci avec l'abrasif de grain de taille 5 μm puis 3 μm pour ôter environ 0,05 mm sur le diamètre.

Le diamètre final sera alors environ 18,7 mm, laissant 0,7 mm de marge au bord sur le rayon. Cette marge, supérieure à la distance sur laquelle les défauts aux bords ont pu être observés sur S6, garantirait donc une bonne conservation de la qualité de surface des substrats. Pour la suite, afin de confirmer cette procédure de débordage, il a été choisi de déborder les substrats dans l'ordre suivant :

1. S6 : mise en place de la procédure sur le plus mauvais substrat ;
2. S5 : vérification de la procédure avec un des substrats « moyen » ;
3. les autres substrats : dans l'ordre S4, S7, S1, S3 puis S2.

Métrologie des secondaires après débordage

Nous présentons à présent les résultats obtenus après le débordage des substrats destinés au miroir primaire. Le substrat S7 n'est pas présenté : un éclat sur le bord s'est formé pendant le polissage après débordage, mettant en danger la zone utile du miroir. Il ne reste donc plus que six substrats potentiels pour le miroir secondaire. Les surfaces mesurées après débordage sont représentées en Figure 4.16. On donne également en Table 4.6 les formes et les pentes mesurées après débordage pour les six substrats restant. On remarque que les formes RMS mesurées sont proches de celles mesurées avant débordage. On peut donc supposer que la qualité de surface est restée à peu près constante après débordage.

4.1.3.2.3 Conclusion sur la fabrication des surfaces optiques

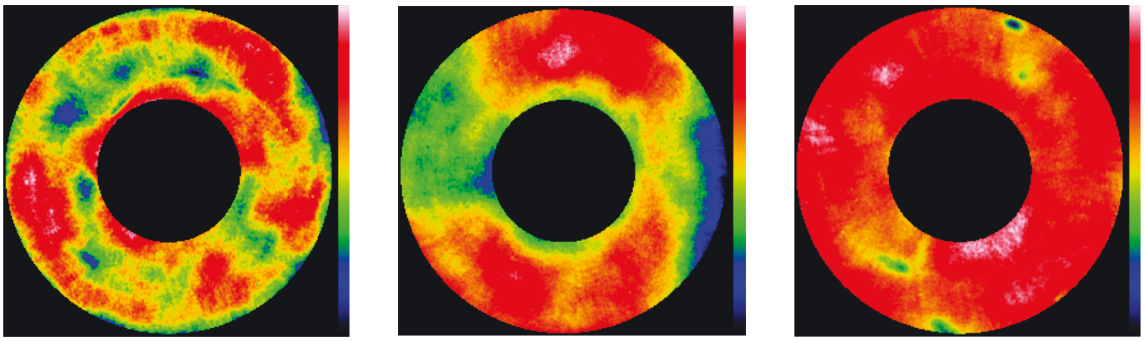
En conclusion, on a vu que la fabrication des substrats destinés aux miroirs primaire et secondaire du Schwarzschild a permis d'aboutir à de très bonnes qualité de surfaces, et notamment :

— d'excellents substrats primaires P1, P2 et P5 ;

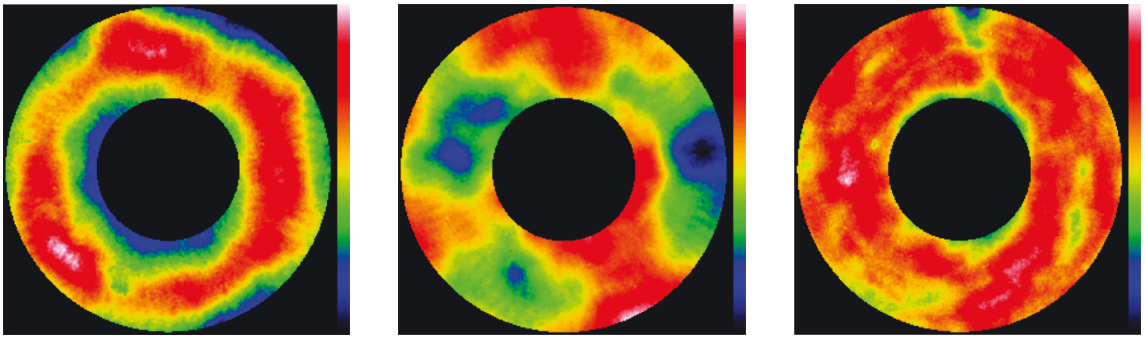
— on a la possibilité d'améliorer la qualité de P2 par érosion ionique ;

Table 4.6 – Forme et rugosité mesurées sur les substrats pour le miroir secondaire après débordage, calculées sur une couronne de diamètre intérieur 7,6 mm et de diamètre extérieur 17,32 mm. Les formes sont exprimées en nm RMS. Les pentes sont les pentes du front d'onde après réflexion sur la surface et sont exprimées en μrad RMS.

Substrat	**S1**	**S2**	**S3**	**S4**	**S5**	**S6**
Forme (nm RMS)	0,59	1,61	0,73	1,28	2,02	1,23
Pentes (μrad RMS)	4,85	6,92	4,70	4,85	4,81	7,75



(a) Échelle : 3.8 nm P-V (b) Échelle : 8,9 nm P-V (c) Échelle : 7 nm P-V



(d) Échelle : 7 nm P-V (e) Échelle : 11,6 nm P-V (f) Échelle : 10,8 nm P-V

Figure 4.16 – Surface mesurée des substrats : (a) S1, (b) S2, (c) S3, (d) S4, (e) S5 et (f) S6. La surface est affichée pour un diamètre compris entre 7,6 mm et 17,32 mm. Le septième substrat S7 n'est pas représenté car l'étape de débordage a malheureusement échoué pour lui.

— cinq des six substrats secondaires restant après débordage sont également très bons et présentent des performances similaires.

Il reste alors à déterminer comment ses surfaces pourraient fonctionner ensemble, et en particulier comment former des paires « primaire – secondaire »dont les défauts de forme se compensent le mieux possible. Dans cette optique, le simulation du Schwarzschild avec le logiciel OSLO (voir Chapitre 2) a été reprise en ajoutant aux miroirs primaire et secondaire les mesures correspondant aux substrats P1 et S1 respectivement. Le front d'onde simulé en sortie est représenté en Figure 4.17.

Avec P1 pour le miroir primaire et S1 pour le miroir secondaire, on mesure un rayon de la tache image de 6,086 μm, soit une résolution dans le plan objet de 304 nm. Cette simulation a été faite sans optimiser le couple « primaire – secondaire » parmi les choix disponibles entre les 5 substrats primaires et six substrats secondaires. Elle nous garantit donc qu'une résolution de 300 nm serait accessible avec le Schwarzschild à la longueur d'onde de 3,14 nm. Cette résolution pourra potentiellement être améliorée en testant d'autres combinaisons primaire–secondaire et en optimisant l'angle d'azimut

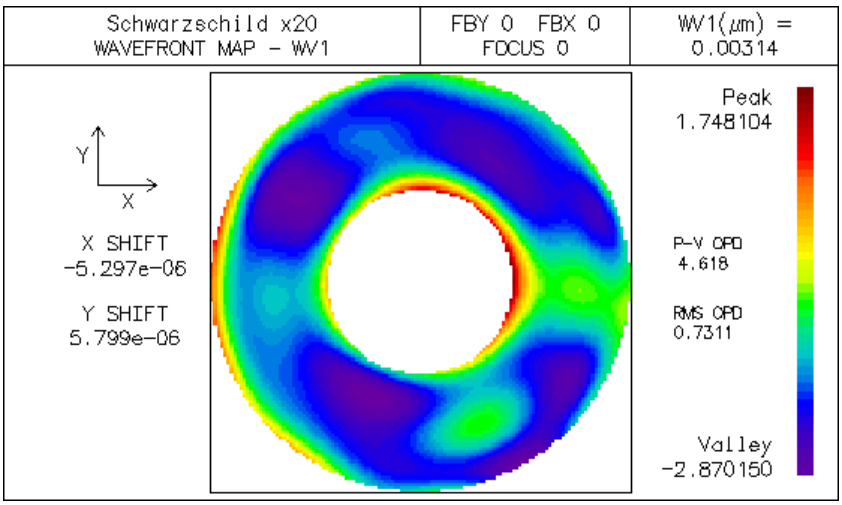


FIGURE 4.17 – Front d'onde obtenu en sortie du Schwarzschild contenant les défauts de forme de P1 pour le miroir primaire et de S1 pour le miroir secondaire.

entre les deux miroirs de manière à obtenir le plus faible rayon de la tache possible. Cette étude est actuellement en cours.

4.2 Mécanique pour le montage et la tenue du microscope

À ce stade du projet, il est important de définir le plan de la mécanique qui permettra la tenue et le réglage du Schwarzschild aux précisions requises. Dans la suite de cette section, on ne présentera que la solution qui a été retenue pour la mécanique de l'objectif du Schwarzschild, ainsi que différents dispositifs permettant le montage de l'objectif (procédure de collage des pattes du miroir primaire et du support du miroir secondaire).

4.2.1 Tenue du microscope

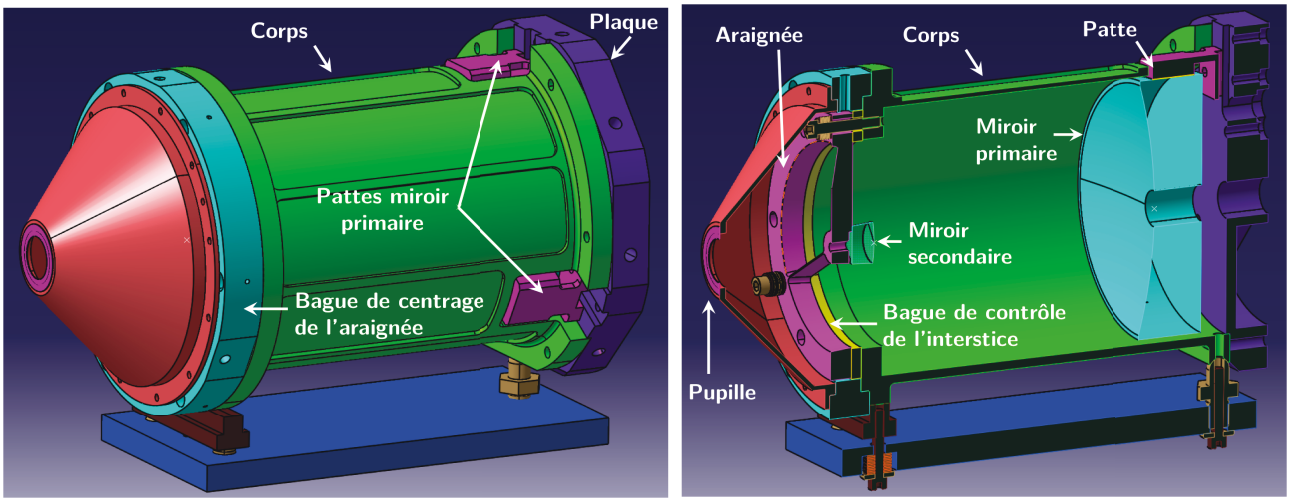
Le dispositif mécanique de tenue du Schwarzschild est représenté en Figure 4.18. Les éléments mécaniques seront en Invar ; cet alliage a l'avantage d'avoir un coefficient de dilatation thermique faible (entre $0{,}5 \cdot 10^{-6}$ K^{-1} et $1{,}2 \cdot 10^{-6}$ K^{-1}) et relativement proche de celui de la silice ($5{,}1 \cdot 10^{-7}$ K^{-1}), le matériau utilisé pour les substrats des miroirs. Ainsi, dans l'éventualité de variations de température, la mécanique et les surfaces optiques évolueront de façon semblable ; on ne risque donc pas de voir apparaître de trop fortes déformations dues à des contraintes appliquées aux miroirs.

Le dispositif mécanique doit permettre de tenir et régler le Schwarzschild avec les précisions spécifiées par le tolérancement décrit au Chapitre 2. On rappelle ici les contraintes que la mécanique doit respecter :

— tolérance sur l'interstice (distance entre les deux miroirs) : 64 μm ;

— décentrement entre les deux miroirs réglable à mieux que 4,94 μm.

Pour satisfaire ces exigences, le Schwarzschild sera installé dans un « tube » en Invar (noté « corps » dans la Figure 4.18 et le reste de cette section), chaque miroir étant disposé à une extrémité du corps (voir Figure 4.18(b)). Le miroir primaire sera maintenu grâce à trois pattes (en rose, à droite sur la Figure 4.18(a)) collées sur la tranche du miroir. Les pattes sont fixées sur un support (« plaque », à droite sur la Figure 4.18) lui-même vissé sur le corps. La plaque sur laquelle sont fixées les pattes



(a) (b)

Figure 4.18 – Vue en coupe du dispositif de tenue du Schwarzschild.

du miroir primaire dispose de huit pans plans sur le bord qui permettront de mesurer l'objectif de Schwarzschild monté à l'interféromètre de Fizeau selon huit orientations, comme pour le contrôle des substrats individuels.

Le miroir secondaire quant à lui, sera collé sur une araignée (fabriquée par électro érosion à fil) comprenant trois pattes très fines et une portion de cône au centre sur lequel sera collée la face arrière du miroir secondaire. Cette portion de cône doit avoir un diamètre plus faible que celui du miroir secondaire pour ne pas obturer davantage le faisceau. Le réglage de l'excentrement se fera grâce une bague supplémentaire disposant de trois vis qui vont pousser ou tirer sur l'araignée du miroir secondaire. Différentes formes pour l'araignée ont été envisagées :

— une araignée à trois pattes rectangulaires séparées de 120° ;

— une araignée à quatre pattes rectangulaires orthogonales ;

— des formes de pattes plus complexes, telles que des pattes incurvées (en arc de cercle), ou composées de différentes portions de disques de sorte à limiter l'influence de la diffraction par les pattes.

L'étude de l'influence des formes des pattes des araignées sur la répartition de la lumière dans la tache image [Harvey1995] a été menée par deux stagiaires de l'Institut d'Optique Graduate School. La réponse percussionnelle a été calculée pour les différentes formes de pattes possibles. L'énergie encerclée sur la réponse percussionnelle a été utilisée pour comparer les formes des pattes. Le rayon de la tache contenant 84% de l'énergie varie relativement peu, typiquement entre 1,7 et 2,3 fois le rayon de la tache d'Airy. L'obstruction par les pattes est également sensiblement la même suivant les pattes choisies : de l'ordre de quelques pour-cents de la zone utile. Il est finalement apparu que les différents types de pattes étudiés ne montraient pas de différences très marquées du point de vue de la lumière diffusée. Il faut également tenir compte de la rigidité des pattes de manière à ce que le miroir secondaire soit tenu correctement. Nous avons donc choisi le design le plus stable pour l'araignée : trois pattes droites écartées de 120°.

Afin d'obtenir la précision requise sur l'interstice, le design mécanique dispose d'une bague entre les deux miroirs (« bague de contrôle de l'interstice », en jaune sur la Figure 4.18(b)). Cette bague pourra être ré-usinée par l'atelier d'optique de manière à ce qu'elle ait la bonne épaisseur pour garantir

un interstice conforme à la valeur désirée, avec la précision requise. Par ailleurs, les deux faces du corps de la mécanique sont apparentes, ce qui va permettre de contrôler et le cas échéant rectifier leur parallélisme par l'atelier d'optique. Ce parallélisme est particulièrement important car il servira à garantir le parallélisme des deux miroirs (du moins : du miroir primaire avec l'araignée du miroir secondaire ; voir plus loin pour la procédure de collage du miroir secondaire) : d'une part, le support du miroir primaire s'appuiera sur une face du tube, d'autre part, l'araignée, par l'intermédiaire de la bague servant à l'ajustement de l'interstice, s'appuiera sur l'autre face.

Le schéma mécanique de tenue du Schwarzschild contient enfin une portion de cône à l'extrémité de laquelle sera collé le diaphragme servant de pupille au système optique (à gauche sur le schéma de la Figure 4.18(b)). Le centrage du diaphragme sera fait en repérant le centre du cône grâce à des mesures au projecteur de profil dont on dispose au laboratoire.

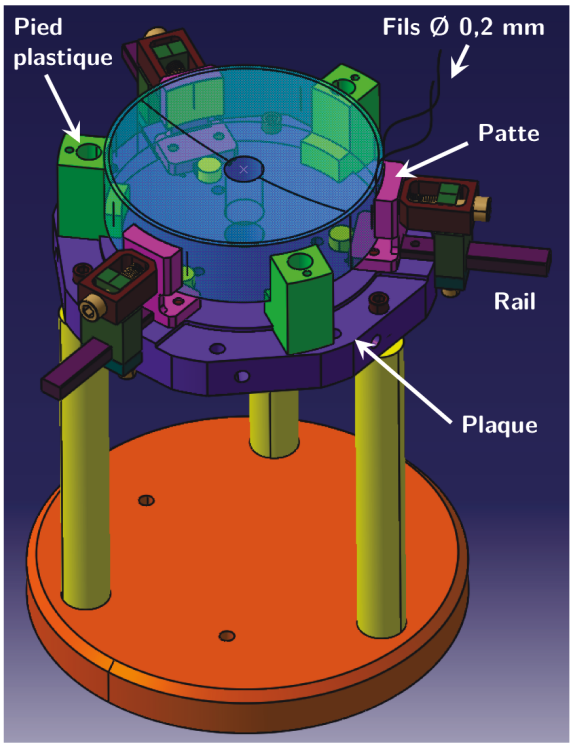
4.2.2 Collage des miroirs sur leur support

Le collage du miroir secondaire sur l'araignée doit être extrêmement précis pour ne pas introduire d'angle entre le miroir et l'araignée. En théorie, le basculement d'une surface sphérique est strictement équivalent à un décentrement (donc non pris en compte dans les calculs de tolérances du Chapitre 2). Dans la pratique cependant, cela introduirait un déplacement de la zone utile sur le miroir, ce qui pose problème :

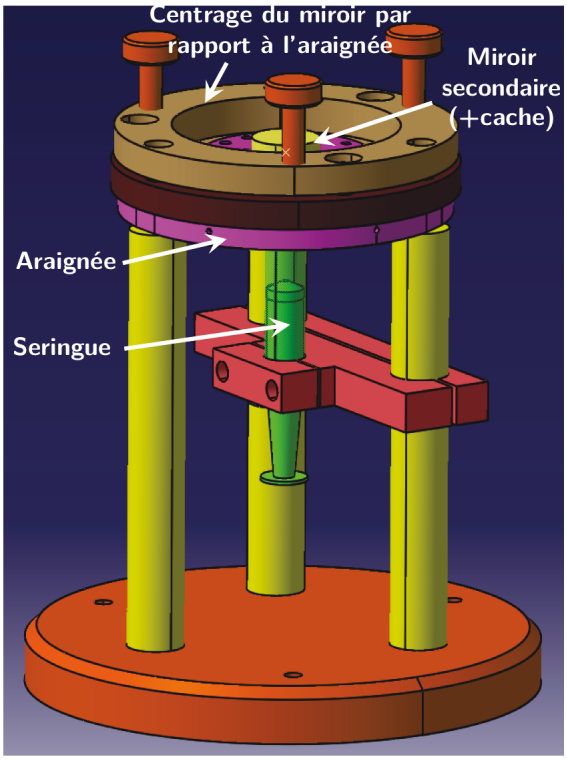
- la forme de la surface risque d'être moins bonne si la zone utile est décalée par rapport à la zone utile théorique (sans basculement du miroir) ;
- le revêtement multicouche peut ne plus être adapté, notamment sa période risque de ne plus rentrer dans l'intervalle de tolérances ;
- si le basculement est trop important, le faisceau peut même sortir du diamètre physique du miroir.

Les pattes du miroir primaire devront être collées après le dépôt du revêtement multicouche : en raison du grand diamètre physique du miroir (114 mm), celui-ci ne pourrait pas entrer dans le porte échantillon du bâti de dépôt MP800 avec les pattes collées. La surface traitée du miroir devra donc être protégée pendant le collage des pattes car elle ne pourra être nettoyée par la suite. Par ailleurs, le collage des pattes ne doit pas induire des contraintes sur le miroir sous peine de déformer la surface (donc risque de grandement dégrader les performances de l'objectif). Les pattes doivent donc être les plus droites possible. Pour cela, il est nécessaire d'utiliser un montage spécifique, représenté en Figure 4.19(a). Le collage sera fait en utilisant directement la plaque sur laquelle seront fixées les pattes du miroir primaire (pièce en violet). Le miroir est disposé sur trois pieds en plastique (en vert sur la Figure 4.19(a)) vissés sur la plaque. Ces trois pièces permettent de centrer le miroir sur le support mécanique et seront ôtées une fois le collage terminé. Les pattes (sur lesquelles on aura déposé et étalé la quantité de colle nécessaire) sont ensuite glissées le long d'un rail et appliquées sur la tranche du miroir. Deux fils de nylon disposés entre le miroir et chaque patte permettront de s'assurer que l'épaisseur de colle est correcte (0,2 mm). Une fois la colle sèche, les pattes sont vissées par en dessous sur le support, et on peut démonter les trois pièces en plastique ainsi que les rails.

En ce qui concerne le **miroir secondaire**, le substrat doit être aligné précisément (en centrage et parallélisme) sur l'araignée grâce à un support à trois vis (voir Figure 4.19(b)). La partie centrale de l'araignée contiendra un creux en forme de disque qui contiendra la colle, laissant donc une couronne au bord qui sera en contact direct avec le substrat. Cette couronne sera ouverte en trois endroits afin



(a)



(b)

Figure 4.19 – Dispositif mécanique pour le collage (a) des pattes du miroir primaire (b) de l'araignée du miroir secondaire.

de pouvoir laisser s'écouler le surplus de colle. Une fois le miroir secondaire en place, la colle est insérée grâce à une seringue par le dessous du montage (soit l'arrière de l'araignée). Le dépôt du revêtement multicouche pourra ensuite être fait sur le miroir secondaire.

4.2.3 Réglage de l'objectif de Schwarzschild

Une fois tous les éléments montés, il sera nécessaire de régler l'instrument. Cette étape sera faite sur l'interféromètre de Fizeau en lumière visible : le Schwarzschild sera mesuré sur l'interféromètre dans la conjugaison pour laquelle il sera utilisé. Il sera nécessaire d'utiliser une référence adaptée ; en particulier, le Schwarzschild sera testé en ayant ses miroirs traités avec le revêtement $CrN_x/B_4C/Sc$. Or, pour une longueur d'onde de 633 nm, on a mesuré, pour des revêtements contenant du Cr et du Sc, une réflectivité de l'ordre de 50% à 60%. Afin d'observer les franges d'interférences avec un contraste suffisant, la référence pourra être traitée.

Les réglages à faire sont les suivants :

1. ajustement de l'interstice ;
2. centrage du miroir secondaire par rapport au miroir primaire ;
3. centrage de la pupille par rapport au miroir primaire.

Pour l'interstice, on a vu lors de la phase de conception de l'instrument que lorsque l'interstice est différent de sa valeur optimale, l'aberration sphérique du 3^e ordre ne sera plus parfaitement corrigée. Ainsi, la mesure de cette aberration à l'interféromètre permettra de déduire la correction à appliquer à l'épaisseur de la bague prévue pour l'ajustement de l'interstice.

Ensuite, si le miroir secondaire n'est pas parfaitement centré sur l'axe du miroir primaire, cela va introduire de la coma. Le réglage de la position de l'araignée pourra alors se faire en minimisant la coma mesurée.

4.3 Revêtements multicouches pour le microscope X dans la fenêtre de l'eau

Les résultats du Chapitre 3 ont montré quel était le design optimal des revêtements multicouches pour la fenêtre de l'eau : $CrN_x/B_4C/Sc$. Le design des revêtements pour les miroirs du microscope n'est pas encore entièrement déterminé. Il reste à définir les épaisseurs des couches ainsi que les tolérances associées.

4.3.1 Design des revêtements multicouches

On cherche à déterminer la période optimale du revêtement multicouche en chaque point des miroirs primaire et secondaire. La loi de Bragg corrigée (voir l'équation (1.38) du Chapitre 1) relie directement la période du revêtement multicouche à l'angle de rasance ϑ :

$$2d \sin\vartheta \sqrt{1 - \frac{2\delta_{eff}}{\sin^2\vartheta}} = m\lambda \tag{4.9}$$

où $\delta_{eff} = 1 - n_{eff}$ avec n_{eff} la partie réelle de l'indice effectif, qui est la moyenne pondérée des indices des matériaux de la multicouche ; m est l'ordre de diffraction. Afin de calculer la période optimale en tout point des miroirs, il suffit donc de calculer les angles d'incidence sur les miroirs primaire et secondaire. On rappelle les caractéristiques du Schwarzschild en Table 4.7. Les notations utilisées pour la suite sont représentées en Figure 4.20.

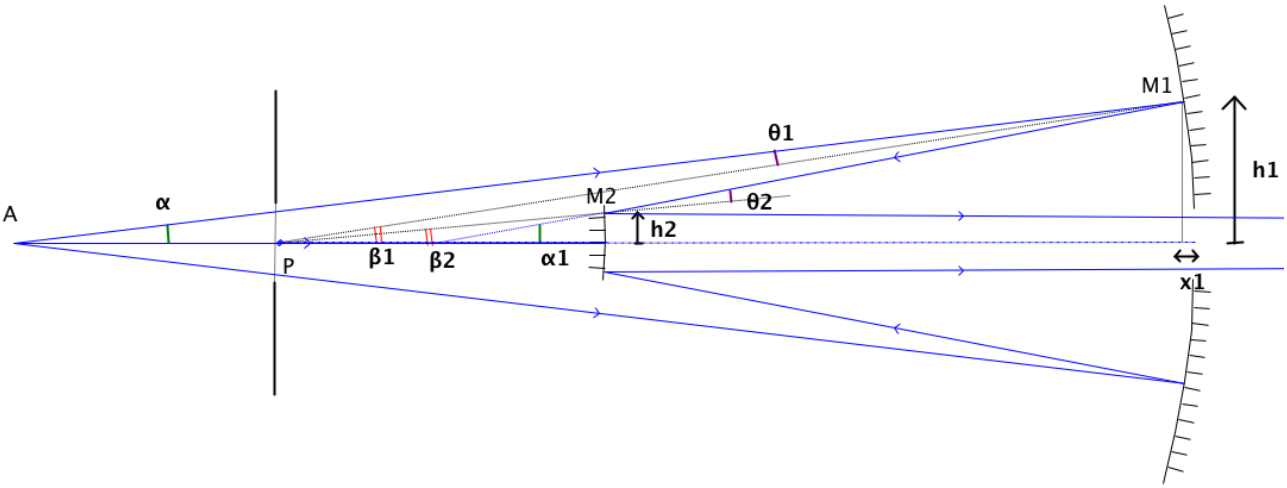


FIGURE 4.20 – Notations utilisées pour le calcul des angles d'incidence sur les miroirs.

On peut calculer les dimensions (diamètres intérieurs) de la zone utile sur chaque miroir. L'obturation est définie par le miroir secondaire : le diamètre intérieur de la zone utile est défini par le rayon passant par le bord du miroir secondaire. Ce rayon arrive dans le plan du miroir primaire avec une hauteur h_1^{min} :

$$h_1^{min} = \frac{\phi_2^{phys} \times \overline{AS_1}}{2 \times \overline{AS_2}} \approx 18{,}77 \text{ mm} \tag{4.10}$$

TABLE 4.7 – Récapitulatif des caractéristiques du Schwarzschild.

Ouverture numérique objet $\sin\alpha_{obj}$	0,15
Distance objet – pupille $\overline{AP}$	60 mm
Distance pupille – miroir primaire $\overline{PS_1}$	210,22 mm
Distance pupille – miroir secondaire $\overline{PS_2}$	74,64 mm
Distance miroir secondaire – image $\overline{S_2A_2}$	1 137,6 mm
Miroir primaire :	
Rayon de courbure R_1	−210 mm
Diamètre extérieur de la zone utile ϕ_1^{utile}	83 mm
Miroir secondaire :	
Rayon de courbure R_2	−74,668 mm
Diamètre extérieur de la zone utile ϕ_2^{utile}	17,3 mm
Diamètre physique (côté face sphérique) ϕ_2^{phys}	18,7 mm

Cela correspond à un angle d'ouverture α_{min} :

$$\alpha_{min} = \arctan\left(\frac{\phi_2^{phys}}{2\overline{AS_2}}\right) \approx 0{,}07 \tag{4.11}$$

Pour un rayon d'angle d'ouverture α compris entre α_{min} et α_{obj}, la hauteur d'impact de ce rayon sur le miroir primaire est h_1. Pour cette hauteur d'impact sur le miroir primaire, la flèche correspondante est dx_1 :

$$dx_1 \approx \frac{h_1^2}{-2R_1} \tag{4.12}$$

La hauteur d'impact sur le miroir primaire pour un angle d'ouverture α vérifie donc :

$$h_1 = \tan\alpha \times \left(\overline{AS_1} - dx_1\right) = \frac{R_1}{\tan\alpha} + \sqrt{\left(\frac{R_1}{\tan\alpha}\right)^2 - 2R_1\overline{AS_1}} \tag{4.13}$$

On peut écrire l'angle β_1 que fait la normale au miroir primaire avec l'axe optique :

$$\beta_1 = \arctan\left(\frac{h_1}{-R_1 - dx_1}\right) \tag{4.14}$$

Ainsi, l'angle d'incidence sur le miroir primaire pour un rayon faisant un angle α avec l'axe optique sera :

$$\theta_1 = \beta_1 - \alpha = \arctan\left(\frac{h_1}{-R_1 - dx_1}\right) - \alpha \tag{4.15}$$

Sur la zone utile du miroir primaire, soit pour α compris entre α_{min} et α_{obj}, l'angle θ_1 variera **entre 1,14° et 2,47°**.

Nous allons maintenant calculer la plage de variation de l'angle d'incidence sur le miroir secondaire. L'angle du rayon après réflexion sur le miroir primaire par rapport à l'axe optique sera :

$$\alpha_1 = \alpha + 2 \times \theta_1 \tag{4.16}$$

L'image intermédiaire A_1 de A par le miroir primaire sera positionnée de sorte que :

$$\overline{A_1S_1} = dx_1 + \frac{h_1}{\tan\alpha_1} \tag{4.17}$$

On va trouver des expressions similaires à celles obtenues pour le miroir primaire. Ainsi, sur le miroir secondaire, la hauteur d'impact h_2 correspondant à un rayon d'angle d'ouverture α vérifie :

$$h_2 = \frac{R_2}{\tan\alpha_1} + \sqrt{\left(\frac{R_2}{\tan\alpha_1}\right)^2 - 2R_2\overline{A_1S_2}} \tag{4.18}$$

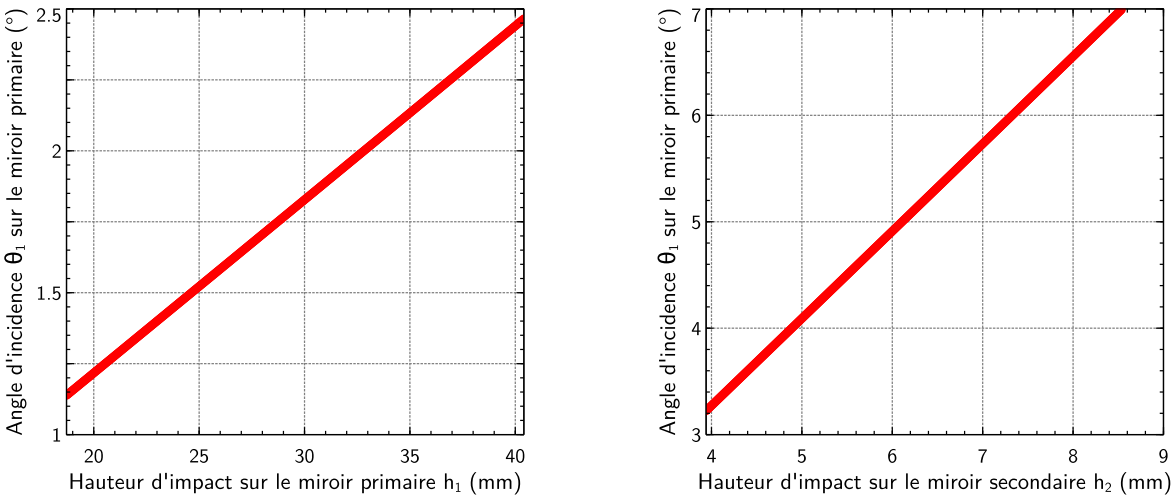
L'angle β_2 de la normale au miroir secondaire avec l'axe optique vérifie :

$$\beta_2 = \arctan\frac{h_2}{-R_2 - dx_2} \tag{4.19}$$

avec $dx_2 \approx \frac{h_2^2}{-2R_2}$ la flèche du miroir secondaire correspondant à une hauteur d'impact h_2. Finalement, l'angle d'incidence sur le miroir secondaire sera :

$$\theta_2 = \alpha_1 - \beta_2 \tag{4.20}$$

L'angle d'incidence sur le miroir secondaire varie **entre 3,22° et 6,99°**. La Figure 4.21 représente la variation de l'angle d'incidence sur le miroir primaire (Figure 4.21(a)) et le miroir secondaire (Figure 4.21(b)) en fonction de la hauteur d'impact h_1 et h_2 dans la zone utile.



(a) (b)

FIGURE 4.21 – Angles d'incidence sur les miroirs primaire et secondaire en fonction de la hauteur d'impact sur le miroir dans la zone utile.

On peut à présent calculer la variation de période des multicouches nécessaire pour compenser cette variation de l'angle d'incidence. Pour simplifier les calculs, on va considérer un revêtement multicouche Cr/Sc simple dont le rapport des épaisseur est $\Gamma = 0{,}6$. La variation de la période ainsi calculée donnera une bonne indication de la variation de la période nécessaire pour un design des revêtements en $CrN_x/B_4C/Sc$. Avec cette proportion, l'indice effectif sera donc :

$$n_{eff} = 0{,}6 \times n_{Cr} + 0{,}4 \times n_{Sc} \approx 0{,}9982 \tag{4.21}$$

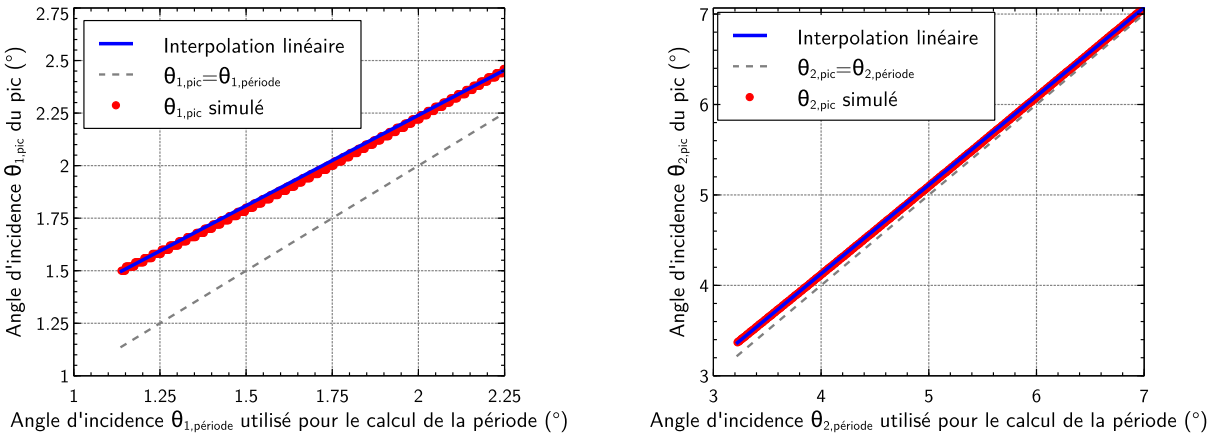
avec $n_{Cr} = 0{,}9951$ et $n_{Sc} = 1{,}0027$ à une énergie de 395 eV (longueur d'onde de 3,14 nm). En remplaçant dans l'équation (4.9), on obtient :

$$d(\vartheta) = \frac{\lambda}{2\sin\vartheta\sqrt{1 - \frac{2\delta_{eff}}{\sin^2\vartheta}}} \tag{4.22}$$

En écrivant l'équation (4.22) en fonction de l'angle d'incidence θ, on obtient :

$$d(\theta) = \frac{\lambda}{2\cos\theta\sqrt{1-\frac{2\delta_{eff}}{\cos^2\theta}}} \tag{4.23}$$

La loi de Bragg corrigée est basée sur certaines hypothèses ; pour une détermination précise de la période optimale en chaque point des miroirs, je me suis basée sur des simulations. Pour cela, j'ai utilisé la procédure suivante : pour chaque angle d'incidence $\theta_{période}$ variant dans la plage angulaire des miroirs primaire et secondaire, j'ai calculé la période correspondante $d(\theta_{période})$ en utilisant la loi de Bragg corrigée et la structure définie précédemment (Cr/Sc 400 périodes, Γ=0,6). La réflectivité est ensuite tracée en fonction de l'angle d'incidence et l'angle θ_{pic} correspondant au maximum de réflectivité est repéré. Ces simulations donnent lieu aux courbes en Figure 4.22 (Figure 4.22(a) pour le miroir primaire et Figure 4.22(b) pour le miroir secondaire) pour lesquelles l'angle du pic θ_{pic} a été tracé en fonction de l'angle $\theta_{période}$ utilisé dans la loi de Bragg corrigée pour le calcul de la période. La courbe en pointillés correspond au cas où l'angle du maximum de réflectivité serait égal à l'angle utilisé pour le calcul de la période.



(a) Miroir primaire (b) Miroir secondaire

FIGURE 4.22 – Position du pic de réflectivité en fonction de celle donnée par la loi de Bragg corrigée.

La position $\theta_{k,pic}$ du pic de réflectivité varie presque linéairement avec l'angle $\theta_{k,période}$ utilisé pour le calcul de la période (k=1 pour le miroir primaire et k=2 pour le miroir secondaire). Une régression linéaire donne la variation suivante pour le miroir primaire :

$$\theta_{1,période} = a_1\theta_{1,pic} + b_1 = 1{,}1617 \times \theta_{1,pic} - 0{,}6019 \tag{4.24}$$

et pour le miroir secondaire :

$$\theta_{2,période} = a_2\theta_{2,pic} + b_2 = 1{,}0188 \times \theta_{2,pic} - 0{,}1995 \tag{4.25}$$

avec $\theta_{k,période}$, $\theta_{k,pic}$ et b_k exprimés en degrés. Pour mieux simuler la période nécessaire sur la zone utile des miroirs primaire et secondaire, j'ai donc utilisé la formule suivante :

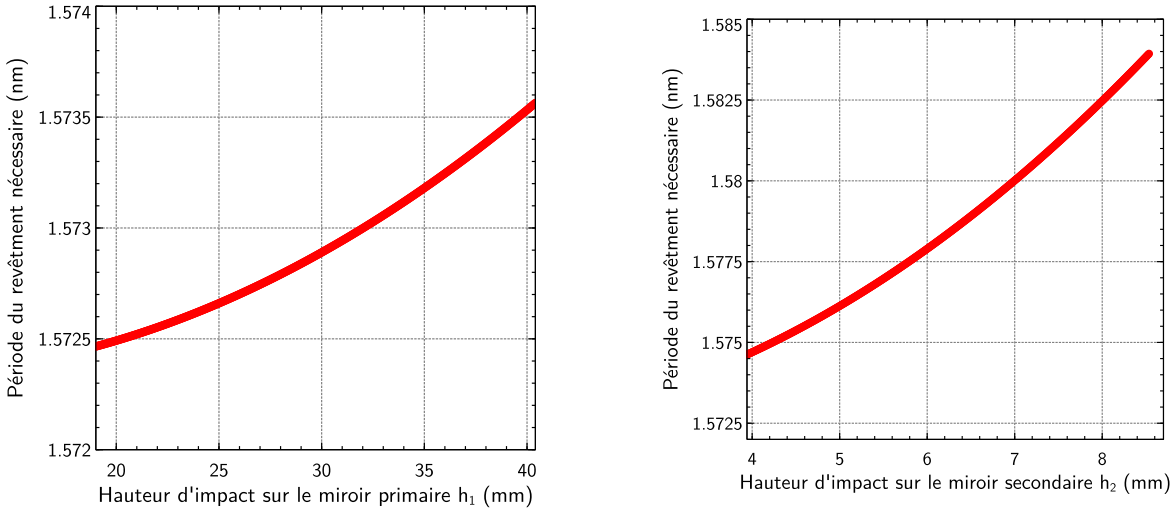
$$d_k(\theta_{k,pic}) = \frac{\lambda}{2\cos\theta_{k,période}\sqrt{1-\frac{2\delta_{eff}}{\cos^2\theta_{k,période}}}} \tag{4.26}$$

avec :

$$\theta_{k,période} = a_k\theta_{k,pic} + b_k \tag{4.27}$$

où $\theta_{k,pic}$ représente les angles d'incidence sur le miroir primaire (k=1) ou secondaire (k=2).

Ainsi, pour le miroir primaire, la période doit varier **entre 1,5725 nm et 1,5736 nm** sur la zone utile. Pour le miroir secondaire, elle doit varier **entre 1,5746 nm et 1,5839 nm**. Les plages de variation de la période sur la zone utile des miroirs primaire et secondaire sont données en Figure 4.23.



(a) (b)

FIGURE 4.23 – Période en fonction de la hauteur d'impact sur : (a) le miroir primaire, et (b) le miroir secondaire.

La Figure 4.23 nous permet de voir que le miroir primaire nécessite une relativement faible variation de période : de l'ordre de 1,1 pm. Pour le miroir secondaire en revanche, la variation de période est plus élevée : de l'ordre de 9,2 pm. Nous allons par la suite déterminer si les variations d'angle d'incidence sur la surface des miroirs sont tolérables ou nécessitent au contraire d'être corrigées par un gradient latéral de période.

4.3.2 Tolérances sur les dépôts

Les pics de réflectivité des revêtements multicouches ont une certaine largeur angulaire qui dépend de leur structure et du nombre de périodes. Dans le cas des revêtements $CrN_x/B_4C/Sc$ que l'on a choisi pour traiter les miroirs du Schwarzschild, le pic de réflectivité n'a pas une largeur angulaire très grande. Pour le revêtement $[CrN_x/B_4C/Sc]_{400}$ dont la réflectivité était la plus élevée, on a mesuré une largeur à mi-hauteur du pic de l'ordre de 3° (voir Figure 4.24). Cette valeur va nous permettre de définir des tolérances pour l'uniformité des revêtements multicouches. Ainsi, on considèrera qu'on peut tolérer un écart Δd de période par rapport à la période optimale en un point donné du miroir tant que celui-ci induit un déplacement du pic de réflectivité de moins de 1,5° dans un sens ou dans l'autre. Dans le pire des cas, la réflectivité en ce point ne sera pas divisée par plus d'un facteur 2.

En particulier, on a vu que l'angle d'incidence sur le miroir primaire varie entre 1,14° et 2,47°, ce qui reste dans une plage acceptable. On pourra également choisir la période optimale de sorte à maximiser la réflectivité sur la totalité de la zone utile du miroir. En revanche, ce n'est pas le cas du miroir secondaire, pour lequel la plage de variation de l'angle d'incidence sort de la plage acceptable : l'angle d'incidence sur le miroir secondaire varie entre 3,22° et 6,99°, ce qui est supérieur à 3°. Ce miroir

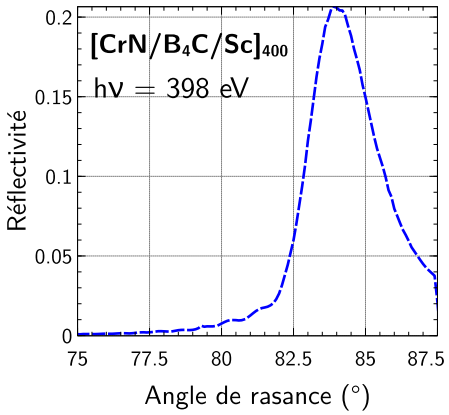
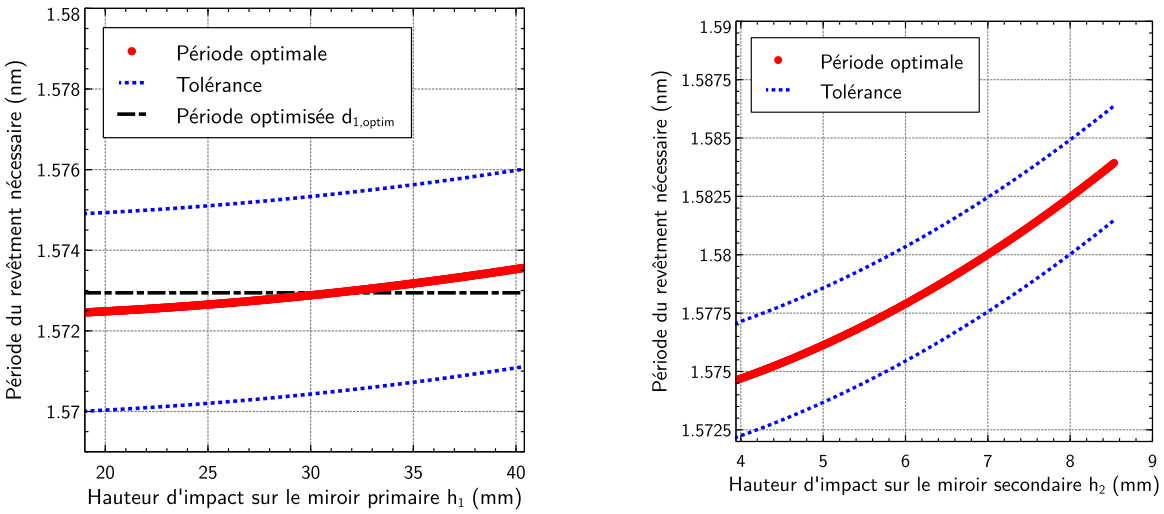


FIGURE 4.24 – Réflectivité mesurée à 398 eV pour un revêtement $CrN_x/B_4C/Sc$ à 400 périodes.

nécessitera donc un gradient latéral de période, de sorte à adapter la période à l'angle d'incidence sur le miroir. Les spécifications de ce gradient seront détaillées dans la suite de ce paragraphe.

Ceci est particulièrement visible sur la Figure 4.25, où l'on a tracé, pour les deux miroirs, la période optimale (représentée également en Figure 4.23) ainsi que les tolérances sur la période en fonction de la hauteur d'impact sur le miroir. La tolérance sur la période est calculée de sorte à ce qu'elle corresponde à une variation de la réflectivité de 50% : cette tolérance sur la période vaut 2,45 pm. La Figure 4.25 indique donc bien que la variation de la période optimale sur le miroir primaire est faible ; pour ce miroir, on peut déposer la même période sur toute la surface du miroir. Ce n'est pas le cas pour le miroir secondaire : il n'est pas possible de garder un design « uniforme », avec la même période sur toute la surface utile du miroir, si l'on veut respecter les tolérances fixées.



(a) (b)

FIGURE 4.25 – Période en fonction de la hauteur d'impact sur : (a) le miroir primaire, et (b) le miroir secondaire, et les tolérances associées (en pointillés) correspondant à une variation de la réflectivité de 50%.

La période du revêtement destiné au miroir primaire peut être calculée de sorte à maximiser la réflectivité sur la zone utile du miroir. Pour chaque hauteur d'impact $h_{1,i}$ sur le miroir primaire correspond un certain angle d'incidence $\theta_{1,i}$, donc une certaine période $d_{1,i}$ (voir Figure 4.26). Pour chaque période $d_{1,i}$, j'ai calculé la réflectivité $R_{1,i}(\theta_1)$ en fonction de l'angle d'incidence θ_1 sur la

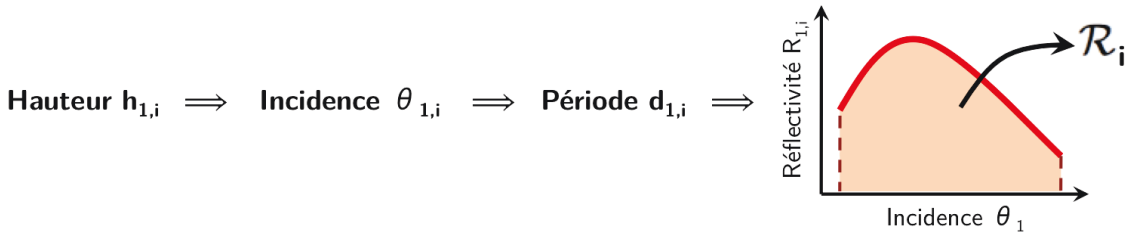


FIGURE 4.26 – Optimisation de la période pour le revêtement multicouche du miroir primaire en maximisant l'intégrale $\mathcal{R}$

plage de variation correspondant à la zone utile du miroir primaire. La période optimisée est celle qui maximise l'intégrale $\mathcal{R}_i = \int_\theta R_{1,i}(\theta_1)d\theta_1$. Avec les paramètres de la simulation (multicouche Cr/Sc à 400 périodes, avec Γ= 0,6), la période optimisée est de $d_{1,optim} = 1{,}5729$ nm. La réflectivité obtenue varie peu sur la zone utile du miroir primaire : la réflectivité simulée est tracée en Figure 4.27. Le maximum du pic de réflectivité correspond à un angle de $\theta_1^{max} = 1{,}8645°$. Cet angle correspond à une distance au centre de $h_1^{max} = 30{,}6$ mm.

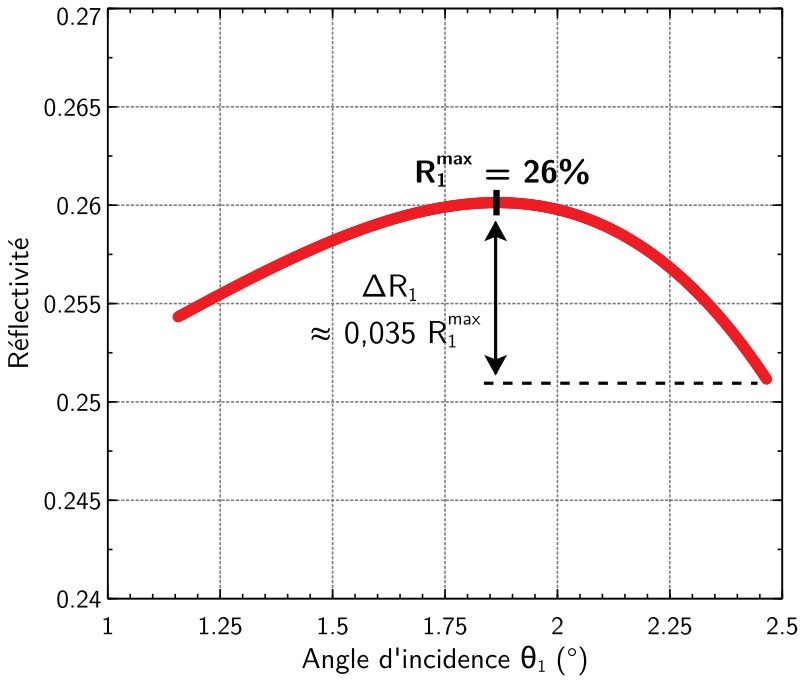


FIGURE 4.27 – Réflectivité simulée avec la période calculée de sorte à maximiser la réflectivité sur l'ensemble de la zone utile du miroir primaire.

Le travail de design sur les revêtements n'est pas terminé. Jusqu'à présent, les spécificités du bâti de dépôt MP800 n'ont pas été prises en compte : on a mentionné au Chapitre 3 (voir paragraphe 3.1.1.1) que le profil radial naturel de dépôt n'est pas parfaitement homogène sur la surface du substrat :

— d'une part : la géométrie du plasma fait que l'épaisseur déposée au bord du substrat est naturellement plus faible qu'au centre. Il a été montré expérimentalement [Gautier2005a] que le profil radial d'épaisseur de la couche déposée varie de manière parabolique avec la distance au centre du substrat : l'épaisseur déposée $e_{radial}(h_1)$ en fonction de la distance au centre h_1 vérifie

$$\Delta e_{radial}(h_1) = \frac{e_{radial}(h_1)}{e_0} = 1 - 2 \cdot 10^{-5} \times r^2 \tag{4.28}$$

où e_0 est l'épaisseur au centre du substrat et r est en mm.

— d'autre part : l'épaisseur de la couche déposée dépend également de la distance entre le substrat et la cible. Plus le substrat est proche de la cible, plus la couche déposée va être épaisse (relation approximativement linéaire entre l'épaisseur déposée et la hauteur du substrat). Ainsi, si le substrat n'est pas plan mais sphérique, l'épaisseur déposée ne sera pas la même au centre et au bord. La variation de l'épaisseur déposée en fonction de la hauteur du substrat sur la plage [100 mm – 112 mm] a été déterminée expérimentalement au laboratoire [Hardouin2007] ; elle vérifie :

$$\Delta e_{hauteur}(z) = \frac{e_{hauteur}(z)}{e_0} = 1 - 0{,}0086 \times z \tag{4.29}$$

où e_0 est l'épaisseur au centre du substrat et z la hauteur par rapport au centre du substrat est en mm. Dans le cas où l'on travaille avec des substrats sphériques, on peut écrire :

$$z(h_1) = R \times \left(1 - \cos\left(\arcsin\left(\frac{h_1}{R}\right)\right)\right) \tag{4.30}$$

où R est le rayon de courbure de la surface.

Le **miroir primaire** étant concave, ses bords seront plus proches des cibles que son centre ($z(h_1 > 0) < 0$ car $R < 0$). Les deux effets décrits précédemment vont donc se compenser, au moins partiellement. Il est nécessaire de quantifier ces deux effets de manière à déterminer si la compensation se fait correctement et dans les tolérances nécessaires. La variation d'épaisseur déposée en fonction de la distance au centre va s'écrire :

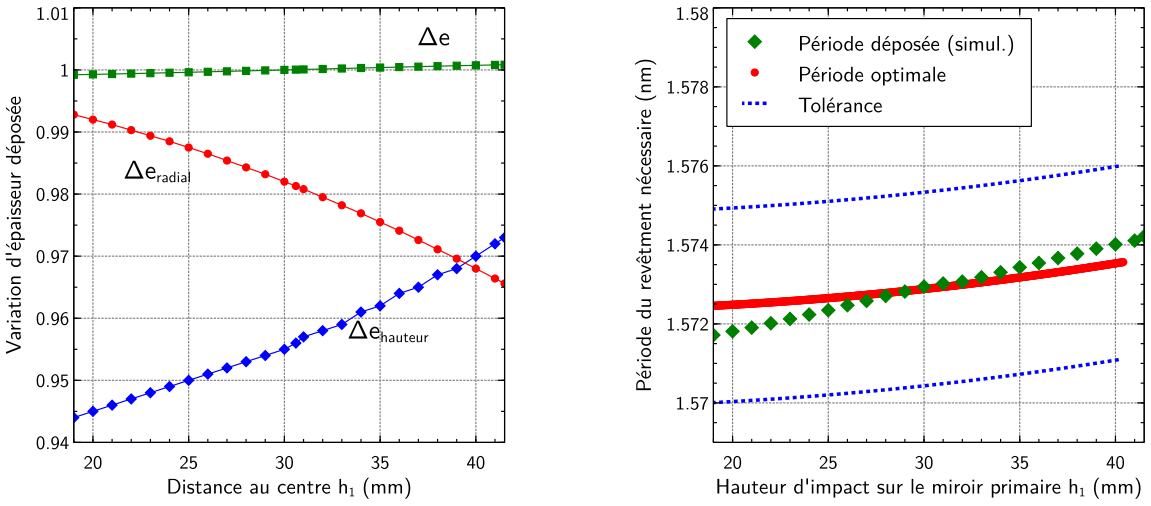
$$\Delta e_{uniformité}(h_1) = \Delta e_{radial}(h_1) \times \Delta e_{hauteur}(h_1) \tag{4.31}$$

Pour plus de lisibilité des résultats, on normalise cette variation d'épaisseur par rapport à la position $h_1 = 0$ mm : en effet, on va utiliser en pratique un échantillon témoin qui sera placé dans le trou du miroir primaire, la hauteur de la surface du témoin correspondant à la hauteur théorique du centre du miroir. La mesure de la période déposée sur cet échantillon témoin permettra donc de déduire la période déposée sur le miroir. La période effectivement déposée pourra vérifier :

$$d_1(h_1) = \Delta e(h_1) \times d_{1,visée} = \frac{\Delta e_{uniformité}(h_1)}{\Delta e_{uniformité}(h_1 = 0 \text{ mm})} \times d_{1,visée} \tag{4.32}$$

où $d_{1,visée}$ correspond à la période de référence, c'est-à-dire celle qui serait déposée au centre du miroir à la bonne hauteur. Pour le miroir primaire, on veut déposer une période uniforme de 1,5729 mm ; ainsi $d_{1,visée}$=1,5729 mm. On trace en Figure 4.28 la variation de la période due à l'uniformité, ainsi que la période optimale et les tolérances associées. Le calcul de la période dite « déposée » a été fait en utilisant l'équation (4.32). Malgré la non uniformité naturelle, on voit donc que la période déposée reste dans l'intervalle des tolérances définies précédemment.

Le **miroir secondaire** en revanche est convexe : ses bords sont donc plus éloignés des cibles que son centre. Les deux effets vont donc dans le même sens et tendent à diminuer l'épaisseur des couches déposées aux bords du substrat par rapport au centre. C'est exactement le contraire de ce que l'on souhaite : on a vu à la Figure 4.25(b) que plus la distance au centre du miroir est élevée, plus la période du revêtement doit être grande de manière à compenser la variation de l'angle d'incidence sur le miroir. De manière analogue au cas du miroir primaire, on calcule la non-uniformité liée au



(a) (b)

FIGURE 4.28 – Simulation de l'uniformité des couches déposées sur le miroir primaire : (a) Non-uniformité naturelle Δe_{radial} et due à la flèche du substrat $\Delta e_{hauteur}$ pour le miroir primaire ; (b) Période déposée (simulation), période optimale et les tolérances en fonction de la distance au centre du miroir primaire sur sa zone utile. La simulation de la période déposée correspond au calcul de la période suivant l'équation (4.32) avec $d_{1,visée}$=1,5729 nm.

plasma $\Delta e_{radial}(h_2)$ et celle liée à la flèche du miroir secondaire $\Delta e_{hauteur}(h_2)$ et on peut en déduire la non-uniformité totale de la période Δe (représentées en Figure 4.29(a)).

$$\Delta e(h_2) = \frac{\Delta e_{radial}(h_2) \times \Delta e_{hauteur}(h_2)}{\Delta e_{radial}(h_2 = 0) \times \Delta e_{hauteur}(h_2 = 0)} \tag{4.33}$$

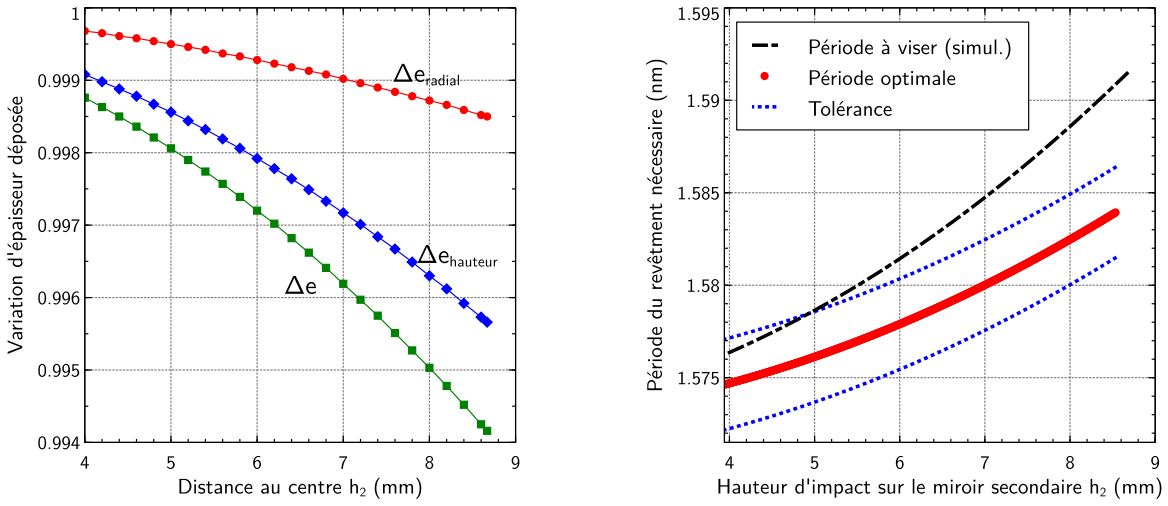
En pratique, les étalonnages pour le revêtement du miroir secondaire seront faits sur un substrat plan, qui n'aura pas l'effet de non-uniformité due à la hauteur. Il est donc intéressant de connaître quelle doit être la période à déposer sur cet échantillon plan de sorte à obtenir la période adaptée sur le substrat du miroir secondaire. Cette valeur est indiquée par la mention « période à viser » dans la Figure 4.29(b). Cette période vérifie :

$$d_{2,\ \text{à}\ visер}(h_2) = \frac{d_2(h_2)}{\Delta e_{hauteur}(h_2)} \tag{4.34}$$

Ainsi, il faut viser un gradient latéral de période allant de 1,5764 nm pour le bord intérieur de la zone utile (h_2=4 mm) à 1,5915 nm pour le bord extérieur de la zone utile (h_2 = 8,67 mm).

4.3.3 En pratique

Concrètement, le dépôt du revêtement multicouche pour le miroir primaire ne nécessitera pas de disposition particulière, car on a vu auparavant que les non-uniformités naturelles se compensent. Ceci doit tout de même être vérifié en pratique avant de pouvoir faire le dépôt final sur les « vrais » substrats. Afin de réaliser les essais pour maîtriser l'uniformité des dépôts, nous allons utiliser un « fantôme » en aluminium, ayant la même forme (dimensions et rayon de courbure) et si possible la même masse que le vrai miroir primaire. Pour les tests, des substrats de silicium vont être fixés sur le fantôme en différents endroits. On pourra donc mesurer la période de la multicouche en fonction de la distance au



(a) (b)

FIGURE 4.29 – Simulation de l'uniformité des couches déposées sur le miroir secondaire : (a) Non-uniformité naturelle Δe_{radial} et due à la flèche du substrat $\Delta e_{hauteur}$ pour le miroir secondaire ; (b) Période à viser pour que la période déposée soit la période optimale (tirets noirs), période optimale (rouge) et les tolérances (pointillés) en fonction de la distance au centre du miroir secondaire sur sa zone utile.

centre du miroir. Les substrats de silicium auront une épaisseur de 1 mm ; ils ne pourront par ailleurs pas épouser la surface du « fantôme ». Il faudra donc tenir compte de l'épaisseur des substrats, ainsi que l'intervalle d'air entre le fantôme et les substrats, car la différence de hauteur entre la surface du fantôme et la surface du substrat de silicium recevant le dépôt induit une différence de période. Cette différence de hauteur pourra être compensée en ajoutant une cale de hauteur adaptée pour surélever le fantôme par rapport aux cibles, et donc placer les substrats à l'exacte hauteur à laquelle sera le véritable miroir.

Pour le miroir secondaire, la zone utile est de faibles dimensions ; il n'y a donc pas de place pour disposer, comme pour le miroir primaire, différents petits échantillons test répartis sur la zone utile. La mesure directe au réflectomètre X rasant en différents points du miroir n'est pas non plus possible en raison de la courbure du miroir (trop grande pour être compensée par les réglages du réflectomètre). Le gradient latéral de période sera donc testé sur substrat plan, en tenant compte de la non-uniformité naturelle du dépôt calculée au paragraphe précédent. Le gradient latéral du miroir secondaire pourra être fabriqué en utilisant une vitesse de passage non constante au dessus des cibles : on va décider que lorsque le centre du miroir secondaire arrive au dessus des cibles, la vitesse de passage sera augmentée. Ainsi l'épaisseur déposée au centre du miroir pourra être plus faible que celle déposée au bord. Dans le cas du miroir secondaire, il faut un gradient latéral de l'ordre de 1% de variation de période sur une distance d'un peu moins de 5 mm. Cette valeur est bien faisable a priori avec le bâti MP800 dont on dispose au laboratoire : des test précédents [Gautier2005a, Delmotte2010] ont permis d'obtenir de forts gradients en changeant la vitesse de passage au dessus des cibles jusqu'à 50% de sa valeur initiale (voir la Figure 3.3 dans le Chapitre 3). Tout l'enjeu est de régler précisément le moment où la vitesse de passage doit être modifiée, ainsi que la variation de la vitesse, de sorte à déposer des épaisseurs compatibles à celles souhaitées.

4.4 Bilan sur l'objectif de Schwarzschild

En conclusion, nous avons vu dans ce chapitre que le développement de l'objectif de Schwarzschild est bien avancé. Les substrats dédiés ont été fabriqués et mesurés sur l'interféromètre de Fizeau en lumière visible, parmi lesquels cinq substrats de miroir primaire et six de miroir secondaire. Ces substrats ont montré des qualités de surface remarquables et une première simulation déduite des mesures permet d'espérer une résolution d'au moins 300 nm. L'étude de l'appariement est en cours pour déterminer un couple optimal de substrats primaire – secondaire donnant lieu à des pentes du front d'onde les plus faibles possible.

Par ailleurs, le schéma mécanique de tenue du Schwarzschild a été dessiné. Ce schéma permettra le réglage des paramètres clés, notamment la distance entre les deux miroirs et le centrage du miroir secondaire.

Enfin, le design et les tolérances des revêtements multicouches ont été définis compte tenu de la géométrie des miroirs et de celle du dépôt :

— pour le miroir primaire : un revêtement de période visée constante sur la zone utile suffit compte tenu des tolérances ;

— pour le miroir secondaire : un revêtement à gradient latéral de période est nécessaire de sorte à compenser la variation de l'angle d'incidence sur la zone utile.

Des tests de fabrication de tels revêtements multicouches seront réalisés prochainement avant les dépôts sur les surfaces du Schwarzschild.

Conclusion et perspectives

La microscopie X dans la fenêtre de l'eau est intéressante car elle permet de réaliser des images à haute résolution d'échantillons biologiques avec un fort contraste d'absorption naturel. Elle est également complémentaire des autres techniques de microscopie en apportant de nouvelles informations. L'utilisation d'une configuration à miroirs pour l'objectif d'imagerie permet par ailleurs de garantir une distance de travail confortable pour l'insertion du cryostat contenant l'échantillon. Durant cette thèse, le but était de concevoir un microscope X dans la fenêtre de l'eau, à miroirs fonctionnant en incidence proche de la normale, et de progresser sur la fabrication et la métrologie de ses différents composants afin de lever certains verrous technologiques. Les axes de recherche étaient de déterminer le schéma optique optimal pour le microscope, de travailler sur des revêtements multicouches à faible période compatibles avec une longueur d'onde dans la fenêtre de l'eau et de définir le design de ces revêtements de sorte à obtenir une réflectivité la plus haute possible.

Pour ce microscope, différents types de solutions optiques ont été étudiées et comparées. Ces solutions, basées sur l'utilisation d'une configuration Schwarzschild, comprenaient : un objectif de Schwarzschild seul, un Schwarzschild suivi d'un troisième miroir sphérique, et un Schwarzschild suivi d'un scintillateur et d'un objectif fonctionnant dans le visible. Ces trois solutions ont dans un premier temps été comparées en utilisant un même cahier des charges, visant une résolution objet de 10 nm. La solution avec conversion des photons X en photons visibles est apparue comme offrant le meilleur compromis entre la faisabilité, la qualité optique et l'efficacité photométrique. En effet, la solution avec un Schwarzschild simple est extrêmement difficile à réaliser en pratique en raison d'un encombrement extrême (plusieurs dizaines de mètres) imposé par le fort grandissement nécessaire. En ce qui concerne le schéma à trois miroirs, l'inclinaison du troisième miroir introduit de l'astigmatisme, détériorant la qualité de l'image produite. Ce schéma est également moins performant du point de vue du nombre de photons que le schéma à conversion des photons X en lumière visible : par exemple, pour une réflectivité par miroir de 20%, on calcule un flux de 19 photons par seconde par pixel pour le schéma à trois miroirs, contre 100 à plusieurs centaines de photons par seconde par pixel pour le schéma avec scintillateur suivant les paramètres choisis. Cette solution à conversion des photons X en lumière visible a donc été retenue pour le schéma du microscope. Le schéma de la partie X a ensuite été optimisé en tenant compte de l'effet des erreurs de forme des substrats, qui diminuent les performances de l'objectif. Il a été estimé que la résolution ne sera pas meilleure que 100 nm, ce qui a été utilisé comme valeur cible pour le nouveau cahier des charges. La partie X sera composée d'un Schwarzschild de grandissement $\times 20$ et d'ouverture numérique 0,15 ; les tolérances ont été calculées de sorte à pouvoir spécifier la mécanique de tenue de l'objectif.

Différents systèmes de revêtements multicouches ont ensuite été étudiés. En premier lieu, une étude a été menée sur des revêtements Cr/B_4C à faible période pour comprendre le comportement des matériaux aux interfaces, en particulier pour modéliser correctement le cas où les couches ont une très

faible épaisseur (moins de 1 nm). Différents échantillons ont été fabriqués au laboratoire par pulvérisation cathodique magnétron et par pulvérisation par faisceau d'ions. Les échantillons ont ensuite été caractérisés en réflectométrie X rasant au laboratoire, en réflectométrie X mous sur ligne de lumière synchrotron (ligne Metrologie du synchrotron SOLEIL), en microscopie à force atomique et en microscopie électronique. On a pu observer la formation d'interfaces asymétriques pour ces multicouches Cr/B_4C : l'analyse des mesures de réflectométrie X et des images de microscopie électronique ont mis en évidence le fait que les deux matériaux interdiffusent à l'interface B_4C-sur-Cr. L'interdiffusion existe à l'autre interface mais est bien plus faible, si bien que les échantillons Cr/B_4C ayant des couches d'épaisseur typiquement supérieure à 1 nm peuvent être simulés correctement en utilisant un modèle à trois couches. Pour les multicouches contenant une fine couche de B_4C (moins de 1,7 nm pour les échantillons déposés par pulvérisation cathodique, ou moins de 1 nm pour les échantillons déposés par pulvérisation ionique), on a montré que le B_4C était entièrement consommé pour former la couche d'interface.

Dans un deuxième temps, des multicouches contenant du chrome et du scandium ont été étudiées de sorte à définir un design optimal pour les multicouches du Schwarzschild. Différents échantillons ont été fabriqués par pulvérisation cathodique magnétron au laboratoire. Ces revêtements devaient fonctionner dans la fenêtre de l'eau près du seuil d'absorption L du scandium (énergie de 398,7 eV) à une incidence proche de la normale, ce qui implique une période faible (moins de 2 nm). Différents systèmes ont été étudiés en réflectométrie X rasant et à la longueur d'onde au synchrotron SOLEIL : des revêtements Cr/Sc simples, des revêtements de chrome et scandium en ajoutant une couche barrière de B_4C à l'une ou l'autre interface ($Cr/B_4C/Sc$ ou $B_4C/Cr/Sc$), des revêtements de chrome et scandium en introduisant un débit d'azote pendant le dépôt du chrome (CrN_x/Sc), ou des revêtements combinant les deux techniques précédentes ($CrN_x/B_4C/Sc$). Les mesures en réflectométrie ont montré que la structure présentant la meilleure réflectivité était le $CrN_x/B_4C/Sc$. En effet, pour un revêtement Cr/Sc à 395 eV (100 périodes), on a mesuré une réflectivité maximale de plus de 3,5%. La réflectivité d'un revêtement $Cr/B_4C/Sc$ de période proche a atteint plus de 7%. Ainsi, l'ajout de B_4C à l'interface Sc-sur-Cr augmente la réflectivité, mais celle-ci diminue lorsque le B_4C est placé à l'autre interface : le revêtement $B_4C/Cr/Sc$ de même période a montré une réflectivité de seulement 2,5%. Par ailleurs, la nitruration du chrome augmente davantage la réflectivité : on obtient plus de 9% de réflectivité pour une multicouche CrN_x/Sc (100 périodes). C'est avec les revêtements $CrN_x/B_4C/Sc$ qu'on obtient la réflectivité la plus haute : 22,9% pour 400 périodes, à une énergie de 397 eV pour un angle d'incidence de 4,3°. Cette structure sera donc celle à utiliser pour les miroirs du Schwarzschild X.

Enfin, la réalisation de l'objectif de microscope en lui-même a été démarrée. Les substrats destinés aux miroirs primaire et secondaire ont été fabriqués par l'atelier d'optique et contrôlés en forme et en rugosité au laboratoire. Ces substrats montrent de très bonnes qualités de surface, avec des rugosités toutes inférieures à 1Å, des formes de l'ordre de 1 nm RMS et des pentes de quelques μrad RMS ; ils permettent d'espérer une résolution meilleure que 300 nm. Le schéma mécanique de tenue de l'objectif et les procédures de montage ont également été finalisées. La mécanique est en cours de fabrication. Enfin, les revêtements multicouches ont été spécifiés de sorte à s'adapter aux contraintes géométriques liées au Schwarzschild et à la technique de dépôt. Le revêtement pour le miroir primaire ne nécessite pas de disposition particulière ; en revanche, pour le miroir secondaire, il est nécessaire de réaliser un gradient latéral de période. Ce gradient a été calculé : il s'agira d'une variation de la période de 2% environ sur 5 mm en rayon. Les tolérances ont également été estimées : la tolérance sur la période est de l'ordre de $\pm$2,5 pm. Ce gradient est compatible avec ce qu'il est possible de faire avec les moyens

de dépôts du laboratoire.

Avant d'obtenir un microscope X fonctionnel, plusieurs étapes sont encore à prévoir. Du point de vue des revêtements multicouches, une étude doit être menée afin de mettre au point expérimentalement le gradient latéral de période du revêtement pour le miroir secondaire. Il faudra également vérifier que l'uniformité pour le miroir primaire est bien conforme aux simulations et que l'on n'a donc pas besoin de compenser une non-uniformité résiduelle. Une fois ces tests réalisés et les paramètres de dépôt optimisés, les dépôts des revêtements pourront être faits sur les substrats. L'objectif de Schwarzschild pourra alors être monté et aligné. Nous utiliserons pour cela l'interféromètre de Fizeau fonctionnant en lumière visible dont nous disposons au laboratoire. Avant d'être capable de réaliser des images, le schéma optique de la partie « visible » doit également être défini. Le microscope pourra alors être testé en conditions réelles sur ligne de lumière synchrotron à la longueur d'onde pour imager des échantillons ; sa résolution sera mesurée de manière à quantifier précisément ses performances.

Malgré toutes les précautions prises et la très grande qualité des surfaces atteintes par l'atelier d'optique, on ne s'attend pas à ce que la résolution du microscope atteigne les valeurs mesurées pour d'autres microscopes X utilisant des lentilles à zones de Fresnel. Au vu des résultats, elle pourrait être de l'ordre de 300 nm (potentiellement un peu meilleure si l'optimisation de l'appariement des miroirs donne de meilleurs résultats), alors que des microscopes X à lentille à zones de Fresnel dans la fenêtre de l'eau atteignent classiquement des résolutions de quelques dizaines de nanomètres. Notre capacité à concevoir un microscope X à très courte longueur d'onde est fortement liée à notre aptitude à fabriquer (donc mesurer...) des surfaces les plus parfaites possible, au sens où les erreurs de pente doivent être les plus faibles possible. Une amélioration pourrait être possible via la retouche locale des défauts d'une surface par usinage par faisceau d'ions. Si l'on sait que cette technique permet d'atteindre de très faibles erreurs de forme, on ignore en revanche si le gain sur les pentes serait suffisamment significatif pour améliorer la résolution d'un microscope X à miroirs dans la fenêtre de l'eau.

Ce travail de thèse a permis de cerner les défis liés à la construction d'un instrument optique utilisant des miroirs à une très courte longueur d'onde. Il a pu notamment mettre en évidence les limitations en terme de résolution. Si un tel système optique ne permet pas de réaliser de l'imagerie à ultra-haute résolution (moins de 100 nm) à une longueur d'onde de l'ordre de 3 nm, d'autres usages sont possibles, tels que l'imagerie de plasma, la focalisation d'impulsions XUV, etc. En particulier, si la longueur d'onde d'utilisation est légèrement plus élevée, l'influence des erreurs de forme sur la qualité du système peut être bien diminuée.

La courte longueur d'onde n'est pas un défi uniquement pour les surfaces optiques : les différentes études de revêtements multicouches effectuées dans le cadre de cette thèse ont permis de constater quels défis technologiques doivent être relevés de manière à fabriquer des revêtements efficaces. En particulier, on a pu voir que la fabrication de revêtements multicouches de qualité pour la fenêtre de l'eau nécessite une précision picométrique sur la période. Or, lors de la fabrication des multicouches, une dérive de la vitesse de dépôt survient généralement ; elle est ici suffisamment importante pour élargir le pic de réflectivité et diminuer la réflectivité maximale. Un moyen de réduire ce phénomène serait de modifier très légèrement les vitesses de dépôt au cours du dépôt après un certain nombre de périodes, de sorte qu'en moyenne, cette variation compense la dérive d'épaisseur qui apparaît.

Enfin, les performances des revêtements multicouches pourront être améliorées si l'on connaît mieux leur comportement. Les différentes études de revêtements multicouches ont permis de mettre en évidence des écarts entre la théorie et les expériences, attribués pour certains à des inexactitudes

ou des lacunes dans les tables de constantes optiques. Il serait donc particulièrement intéressant de mesurer les indices optiques que l'on connaît mal, en particulier pour le chrome nitruré dont on a pour le moment uniquement déduit la composition à partir des mesures en réflectométrie X rasant. Cette mesure précise des constantes optiques permettrait de mieux simuler les performances des revêtements contenant du chrome nitruré.

Par ailleurs, la compréhension et la modélisation du comportement des matériaux dans le cas de couches d'épaisseur inférieure au nanomètre est encore difficile ; le modèle de rugosité notamment est relativement peu adapté lorsque les épaisseurs des couches ne sont que de quelques angströms. Des études additionnelles seraient intéressantes afin de mieux comprendre, simuler et améliorer ces revêtements.

Bibliographie

[Abelès1950] F. Abelès. **Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoïdales dans les milieux stratifiés. Application aux couches minces**. Thèse, Faculté des sciences de l'Université de Paris, 1950.

[Als-Nielsen2011] J. Als-Nielsen & D. McMorrow. *Elements of modern x-ray physics, 2nd ed.* John Wiley & Sons Ltd, 2011.

[Attwood1999] D. Attwood. *Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation*. Cambridge University Press, 1999.

[Baez1952] A. V. Baez, (1952). "A Study in Diffraction Microscopy with Special Reference to X-Rays". *J. Opt. Soc. Am.*, **42**(10), pp. 756–762.

[Bajt1999] S. Bajt, R. D. Behymer, P. B. Mirkarimi, C. Montcalm, M. A. Wall, M. Wedowski & J. A. Folta. "Experimental investigation of beryllium-based multilayer coatings for extreme ultraviolet lithography", *Proc. SPIE*, **3767**, pp. 259–270, (1999).

[Bajt2002] S. Bajt, J. B. Alameda, T. W. Barbee Jr., W. M. Clift, J. A. Folta, B. Kaufmann & E. A. Spiller, (2002). "Improved reflectance and stability of Mo-Si multilayers". *Optical Engineering*, **41**(8), pp. 1797–1804.

[Bakshi2009] V. Bakshi. EUV lithography, chapitre 4. "Optics and Multilayer Coatings for EUVL Systems". SPIE Press, 2009.

[Barbee1985] T. W. Barbee, S. Mrowka & M. C. Hettrick, (1985). "Molybdenum-silicon multilayer mirrors for the extreme ultraviolet". *Appl. Opt.*, **24**(6), pp. 883–886.

[Bennett1961] H. E. Bennett & J. O. Porteus, (1961). "Relation Between Surface Roughness and Specular Reflectance at Normal Incidence". *J. Opt. Soc. Am.*, **51**(2), pp. 123–129.

[Bertilson2007] M. C. Bertilson, P. A. C. Takman, A. Holmberg, U. Vogt & H. M. Hertz, (2007). "Laboratory arrangement for soft x-ray zone plate efficiency measurements". *Review of Scientific Instruments*, **78**(2).

[Bertilson2009] M. Bertilson, O. von Hofsten, U. Vogt, A. Holmberg & H. M. Hertz, (2009). "High-resolution computed tomography with a compact soft x-ray microscope". *Opt. Express*, **17**(13), pp. 11057–11065.

[Born1980] M. Born & E. Wolf. hapitre IX - The diffraction theory of aberrations. In Principles of Optics, pp. 459 – 490. Pergamon, sixth (corrected) edition edition, 1980.

[Bourassin-Bouchet2012] C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi, J. Wang, E. Meltchakov, A. Giglia, N. Mahne, S. Nannarone & F. Delmotte, (2012). "Shaping of single-cycle sub-50-attosecond pulses with multilayer mirrors". *New Journal of Physics*, **14**(2), p. 023040.

[Brejnholt2014] N. F. Brejnholt, R. Soufli, M.-A. Descalle, M. Fernández-Perea, F. E. Christensen, A. C. Jakobsen, V. Honkimäki & M. J. Pivovaroff, (2014). "Demonstration of multilayer reflective optics at photon energies above 0.6 MeV". *Opt. Express*, **22**(13), pp. 15364–15369.

[Bridou2002] F. Bridou, R. Mercier, A. Raynal, J. Y. Clotaire, C. Colas, P. Fournet, M. Idir, G. Soullié, C. Remond & P. Troussel, (2002). "Large field double Kirkpatrick–Baez microscope with nonperiodic multilayers for laser plasma imaging". *Review of Scientific Instruments*, **73**(11), pp. 3789–3795.

[Burcklen2016] C. Burcklen, R. Soufli, D. Dennetiere, F. Polack, B. Capitanio, E. Gullikson, E. Meltchakov, M. Thomasset, A. Jérome, S. de Rossi & F. Delmotte, (2016). "Cr/B_4C multilayer mirrors : Study of interfaces and X-ray reflectance". *Journal of Applied Physics*, **119**(12).

[Carré1966] P. Carré, (1966). "Installation et utilisation du comparateur photoélectrique et interférentiel du Bureau International des Poids et Mesures". *Metrologia*, **2**, pp. 13–23.

[Ceglio1985] N. M. Ceglio, D. G. Stearns & A. M. Hawryluk. "Multilayer Structures For X-Ray Laser Cavities", *Proc. SPIE*, **0563**, pp. 360–366, (1985).

[Chang1985] L. Chang & B. Giessen. *Synthetic modulated structures*. Materials science and technology. Academic Press, 1985.

[Chao2005] W. Chao, B. D. Harteneck, J. A. Liddle, E. H. Anderson & D. T. Attwood, (2005). "Soft X-ray microscopy at a spatial resolution better than 15 nm". *Nature*, **435**(7046), pp. 1210–1213.

[Chao2009] W. Chao, J. Kim, S. Rekawa, P. Fischer & E. H. Anderson, (2009). "Demonstration of 12 nm Resolution Fresnel Zone Plate Lens based Soft X-ray Microscopy". *Opt. Express*, **17**(20), pp. 17669–17677.

[Conforti1983] G. Conforti, (1983). "Zernike aberration coefficients from Seidel and higher-order power-series coefficients". *Opt. Lett.*, **8**(7), pp. 407–408.

[de Rossi2015] S. de Rossi, C. Bourassin-Bouchet, E. Meltchakov, A. Giglia, S. Nannarone & F. Delmotte, (2015). "Phase measurement of soft x-ray multilayer mirrors". *Opt. Lett.*, **40**(19), pp. 4412–4415.

[Delmotte2010] F. Delmotte. **Couches minces et optiques multicouches dans le domaine spectral XUV (1 nm à 60 nm)**. Habilitation à diriger des recherches, Université Paris-Sud, Février 2010.

[DEP1939] erfahren zur Erhoehung der Lichtdurchlaessigkeit optischer Teile durch Erniedrigungdes Brechungsexponenten an den Grenzflaechen dieser optischen Teile, Décembre 1939. DE Patent 685,767.

[Deubner1930] W. Deubner, (1930). "Versuche über die Reflexion von Röntgenstrahlen an einem künstlich hergestellten Schichtenkörper. (Mit 5 Figuren)". *Annalen der Physik*, **397**(2), pp. 261–280.

[Dinklage1967] J. B. Dinklage, (1967). "X-Ray Diffraction by Multilayered Thin-Film Structures and Their Diffusion". *Journal of Applied Physics*, **38**(9), pp. 3781–3785.

[Dodin1984] L. Dodin. *Manuel du tailleur et polisseur de verres d'optique*. Éd. du Cagire, 1984.

[DuMond1940] J. DuMond & J. P. Youtz, (1940). "An X-Ray Method of Determining Rates of Diffusion in the Solid State". *Journal of Applied Physics*, **11**(5), pp. 357–365.

[Emprin2014] B. Emprin. **Développement d'optiques multicouches pour la spectrométrie X large bande du rayonnement émis par les plasmas**. Thèse, Institut d'Optique Graduate School, Novembre 2014.

[Eriksson2003] F. Eriksson, G. A. Johansson, H. M. Hertz, E. M. Gullikson, U. Kreissig & J. Birch, (2003). "14.5% near-normal incidence reflectance of Cr Sc x-ray multilayer mirrors for the water window". *Opt. Lett.*, **28**(24), pp. 2494–2496.

[Ewald1986] P. P. Ewald, (1986). "The so-called correction of Bragg's law". *Acta Crystallographica Section A*, **42**(6), pp. 411–413.

[Fischer2006] P. Fischer, D.-H. Kim, W. Chao, J. A. Liddle, E. H. Anderson & D. T. Attwood, (2006). "Soft X-ray microscopy of nanomagnetism". *Materials Today*, **9**(1–2), pp. 26 – 33.

[Fischer2008] R. E. Fischer, B. Tadic-Galeb & P. R. Yoder. *Optical System Design, Second Edition*. McGraw-Hill Professional, 2008.

[Gautier2005a] J. Gautier. **Étude et élaboration de revêtements multicouches pour l'optique extrême UV dans la gamme spectrale 30-50 nm**. Thèse, Université Paris Sud - Paris XI, Octobre 2005.

[Gautier2005b] J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, F. Bridou, M.-F. Ravet & A. Jérome, (2005). "Study of normal incidence of three-component multilayer mirrors in the range 20–40 nm". *Appl. Opt.*, **44**(3), pp. 384–390.

[Ghafoor2006] N. Ghafoor, P. O. Å. Persson, J. Birch, F. Eriksson & F. Schäfers, (2006). "Interface engineered ultrashort period Cr-Ti multilayers as high reflectance mirrors and polarizers for soft x rays of $\lambda = 2.74$ nm wavelength". *Appl. Opt.*, **45**(1), pp. 137–143.

[Ghafoor2008] N. Ghafoor, F. Eriksson, E. Gullikson, L. Hultman & J. Birch, (2008). "Incorporation of nitrogen in Cr,àïSc multilayers giving improved soft x-ray reflectivity". *Applied Physics Letters*, **92**(9).

[Glatzel2013] H. Glatzel, D. Ashworth, M. Bremer, R. Chin, K. Cummings, L. Girard, M. Goldstein, E. Gullikson, R. Hudyma, J. Kennon, B. Kestner, L. Marchetti, P. Naulleau, R. Soufli & E. Spiller. "Projection optics for extreme

ultraviolet lithography (EUVL) micro-field exposure tools (METs) with a numerical aperture of 0.5", *Proc. SPIE*, **8679**, pp. 867917–867917–16, (2013).

[Goldsmith1999] J. E. M. Goldsmith, K. W. Berger, D. R. Bozman, G. F. Cardinale, D. R. Folk, C. C. Henderson, D. J. O'Connell, A. K. Ray-Chaudhuri, K. D. Stewart, D. A. Tichenor, H. N. Chapman, R. J. Gaughan, R. M. Hudyma, C. Montcalm, E. A. Spiller, J. S. Taylor, J. D. Williams, K. A. Goldberg, E. M. Gullikson, P. P. Naulleau & J. L. Cobb. "Sub-100-nm lithographic imaging with an EUV 10X microstepper", *Proc. SPIE*, **3676**, pp. 264–271, (1999).

[Golub1985] L. Golub, G. Nystrom, E. Spiller & J. Wilczynski. "Construction Of A Multilayered X-Ray Telescope For Solar Coronal Studies From Space", *Proc. SPIE*, **0563**, pp. 266–274, (1985).

[Gorelick2011] S. Gorelick, J. Vila-Comamala, V. A. Guzenko, R. Barrett, M. Salomé & C. David, (2011). "High-efficiency Fresnel zone plates for hard X-rays by 100 keV e-beam lithography and electroplating". *Journal of Synchrotron Radiation*, **18**(Pt 3), pp. 442–446.

[Guggenmos2013] A. Guggenmos, R. Rauhut, M. Hofstetter, S. Hertrich, B. Nickel, J. Schmidt, E. M. Gullikson, M. Seibald, W. Schnick & U. Kleineberg, (2013). "Aperiodic CrSc multilayer mirrors for attosecond water window pulses". *Opt. Express*, **21**(19), pp. 21728–21740.

[Guggenmos2014] A. Guggenmos, S. Radünz, R. Rauhut, M. Hofstetter, S. Venkatesan, A. Wochnik, E. M. Gullikson, S. Fischer, B. Nickel, C. Scheu & U. Kleineberg, (2014). "Ion polished Cr/Sc attosecond multilayer mirrors for high water window reflectivity". *Opt. Express*, **22**(22), pp. 26526–26536.

[Gullikson2001] E. M. Gullikson, S. Mrowka & B. B. Kaufmann. "Recent developments in EUV reflectometry at the Advanced Light Source", *Proc. SPIE*, **4343**, pp. 363–373, (2001).

[Gullikson2008] E. M. Gullikson, F. Salmassi, A. L. Aquila & F. Dollar. rogress in short period multilayer coatings for water window applications, 2008. Voir : www.escholarship.org/uc/item/8hv7q0hj.

[Haddad1994] W. S. Haddad, I. McNulty, J. E. Trebes, E. H. Anderson, R. A. Levesque & L. Yang, (1994). "Ultrahigh-Resolution X-ray Tomography". *Science*, **266**(5188), pp. 1213–1215.

[Haelbich1980] R.-P. Haelbich, W. Staehr & C. Kunz, (1980). "A scanning ultrasoft X-ray microscope with large aperture reflection optics for use with synchrotron radiation". *Annals of the New York Academy of Sciences*, **342**(1), pp. 148–156.

[Hailey2010] C. J. Hailey, H. An, K. L. Blaedel, N. F. Brejnholt, F. E. Christensen, W. W. Craig, T. A. Decker, M. Doll, J. Gum, J. E. Koglin, C. P. Jensen, L. Hale, K. Mori, M. J. Pivovaroff, M. Sharpe, M. Stern, G. Tajiri & W. W. Zhang. "The Nuclear Spectroscopic Telescope Array (NuSTAR) : optics

overview and current status", *Proc. SPIE*, **7732**, pp. 77320T–77320T–13, (2010).

[Hardouin2007] A. Hardouin. **Développement de composants optiques asphériques avec traitement de multicouches réflectives pour l'analyse X**. Thèse, Université Paris Sud - Paris XI, Décembre 2007.

[Harvey1995] J. E. Harvey & C. Ftaclas, (1995). "Diffraction effects of telescope secondary mirror spiders on various image-quality criteria". *Appl. Opt.*, **34**(28), pp. 6337–6349.

[Harvey2012] J. E. Harvey, S. Schröder, N. Choi & A. Duparré, (2012). "Total integrated scatter from surfaces with arbitrary roughness, correlation widths, and incident angles". *Optical Engineering*, **51**(1), pp. 013402–1–013402–11.

[Hawryluk1988] A. M. Hawryluk & L. G. Seppala, (1988). "Soft x-ray projection lithography using an x-ray reduction camera". *Journal of Vacuum Science & Technology B*, **6**(6), pp. 2162–2166.

[Hecht2002] E. Hecht. *Optics (4th Edition)*. Addison-Wesley, 2002.

[Henke1993] B. Henke, E. Gullikson & J. Davis, (1993). "X-Ray Interactions : Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at E = 50-30,000 eV, Z = 1-92". *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **54**(2), pp. 181 – 342.

[Holmberg2011] A. Holmberg, J. Reinspach, M. Lindblom, E. Chubarova, M. Bertilson, O. von Hofsten, D. Nilsson, M. Selin, D. Larsson, P. Skoglund, U. Lundström, P. Takman, U. Vogt & H. M. Hertz, (2011). "Towards 10 nm Soft X-Ray Zone Plate Fabrication". *AIP Conference Proceedings*, **1365**(1), pp. 18–23.

[Huang2009] B. Huang, M. Bates & X. Zhuang, (2009). "Super-Resolution Fluorescence Microscopy". *Annual Review of Biochemistry*, **78**(1), pp. 993–1016.

[Huang2016] Q. Huang, J. Fei, Y. Liu, P. Li, M. Wen, C. Xie, P. Jonnard, A. Giglia, Z. Zhang, K. Wang & Z. Wang, (2016). "High reflectance Cr/V multilayer with B4C barrier layer for water window wavelength region". *Opt. Lett.*, **41**(4), pp. 701–704.

[Idir2006] M. Idir, P. Mercere, T. Moreno & A. Delmotte, (2006). "Technical Report : Metrology and Test Beamline at SOLEIL". *Synchrotron Radiation News*, **19**(4), pp. 18–23.

[Iketaki1994] Y. Iketaki, M. Atsumi, H. Kamijou, M. Shibuya, Y. Horikawa, S. Mochimaru & K. Nagai, (1994). "Evaluation of the optical characteristics of the Schwarzschild x-ray objective". *Opt. Lett.*, **19**(22), pp. 1804–1806.

[Jacobsen1991] C. Jacobsen, S. Williams, E. Anderson, M. Browne, C. Buckley, D. Kern, J. Kirz, M. Rivers & X. Zhang, (1991). "Diffraction-limited imaging in a scanning transmission x-ray microscope". *Optics Communications*, **86**(3), pp. 351–364.

[Johansson2000] G. A. Johansson, M. Berglund, L. Rymell, Y. Platonov & H. M. Hertz, (2000). "Characterization of normal-incidence water-window multilayer optics". *AIP Conference Proceedings*, **507**(1), pp. 337–339.

[Kern1984] D. Kern, P. Coane, R. Acosta, T. P. Chang, R. Feder, P. Houzego, W. Molzen, J. Powers, A. Speth & R. Viswanathan. "Electron Beam Fabrication And Characterization Of Fresnel Zone Plates For Soft X-Ray Microscopy", *Proc. SPIE*, **0447**, pp. 204–213, (1984).

[Keski-Kuha1985] R. A. M. Keski-Kuha, R. J. Thomas, G. L. Epstein & J. F. Osantowski. "Layered Synthetic Microstructures for Solar EUV Telescopes", *Proc. SPIE*, **0563**, pp. 299–305, (1985).

[Kinoshita1989] H. Kinoshita, K. Kurihara, Y. Ishii & Y. Torii, (1989). "Soft x-ray reduction lithography using multilayer mirrors". *Journal of Vacuum Science & Technology B*, **7**(6), pp. 1648–1651.

[Kinoshita1991] H. Kinoshita, K. Kurihara & H. Takenaka, (1991). "Soft X-Ray Reduction Lithography Using Multilayer Mirrors". *Japanese Journal of Applied Physics*, **30**(11S), p. 3048.

[Kirkpatrick1948] P. Kirkpatrick & A. V. Baez, (1948). "Formation of Optical Images by X-Rays". *J. Opt. Soc. Am.*, **38**(9), pp. 766–774.

[Kirz1974] J. Kirz, (1974). "Phase zone plates for x rays and the extreme UV". *J. Opt. Soc. Am.*, **64**(3), pp. 301–309.

[Kirz1985] J. Kirz & H. Rarback, (1985). "Soft x-ray microscopes". *Review of Scientific Instruments*, **56**(1), pp. 1–13.

[Kirz1995] J. Kirz, C. Jacobsen & M. Howells, (1995). "Soft X-ray microscopes and their biological applications.". *Q. Rev. Biophys.*, **28**(1), pp. 33–130.

[Kramers1927] H. A. Kramers, (1927). "La diffusion de la lumière par les atomes". *Atti del Congresso Internationale dei Fisici, Como*, **2**, pp. 545–557.

[Kronig1926] R. D. L. Kronig, (1926). "On the Theory of Dispersion of X-Rays". *J. Opt. Soc. Am.*, **12**(6), pp. 547–557.

[Kuhlmann2002] T. Kuhlmann, S. Yulin, T. Feigl, N. Kaiser, T. Gorelik, U. Kaiser & W. Richter, (2002). "Chromium–scandium multilayer mirrors for the nitrogen K α line in the water window region". *Appl. Opt.*, **41**(10), pp. 2048–2052.

[Kunz1990] C. Kunz, (1990). "Recent developments in soft X-ray microscopy". *AIP Conference Proceedings*, **215**(1), pp. 208–230.

[Larruquert2002] J. I. Larruquert, (2002). "Reflectance enhancement in the extreme ultraviolet and soft x rays by means of multilayers with more than two materials". *J. Opt. Soc. Am. A*, **19**(2), pp. 391–397.

[Lowenthal1988] S. Lowenthal. "Two And Three Dimensional Imaging Of Laser Plasma X-Rays", *Proc. SPIE*, **0831**, pp. 102–112, (1988).

[Malacara-Hernández2013] D. Malacara-Hernández & Z. Malacara-Hernández. *Handbook of Optical Design, Third Edition*. Optical Engineering. CRC Press, 2013.

[Marioge2012] J. Marioge. *Surfaces optiques - Méthodes de fabrication et de contrôle, recherches.* Hors Collection. EDP Sciences, 2012.

[Mercier2008] R. Mercier, M. Mullot & M. Lamare. road Ion-Beam Milling Techniques, Results and Prospects. In Frontiers in Optics 2008/Laser Science XXIV/Plasmonics and Metamaterials/Optical Fabrication and Testing. Optical Society of America, 2008. Papier OThD1.

[Montcalm1998] C. Montcalm, S. Bajt, P. B. Mirkarimi, E. A. Spiller, F. J. Weber & J. A. Folta. "Multilayer reflective coatings for extreme-ultraviolet lithography", *Proc. SPIE*, **3331**, pp. 42–51, (1998).

[Morgan1982] C. J. Morgan, (1982). "Least-squares estimation in phase-measurement interferometry". *Opt. Lett.*, **7**(8), pp. 368–370.

[Murakami1992] K. Murakami, T. Oshino, H. Nakamura, M. Ohtani & H. Nagata, (1992). "Normal-Incidence X-Ray Microscope for Carbon Kα Radiation with 0.5 μm Resolution". *Japanese Journal of Applied Physics*, **31**(10B), p. L1500.

[Nagata1994] H. Nagata, M. Ohtani, K. Murakami, H. Oizumi, Y. Yamashita & N. Atoda, (1994). "Reduction Imaging at 4.5 nm with Schwarzschild Optics". *Japanese Journal of Applied Physics*, **33**(8B), p. L1192.

[Naulleau2005] P. Naulleau, K. A. Goldberg, E. Anderson, J. P. Cain, P. Denham, B. Hoef, K. Jackson, A.-S. Morlens, S. Rekawa & K. Dean. "EUV microexposures at the ALS using the 0.3-NA MET projection optics", *Proc. SPIE*, **5751**, pp. 56–63, (2005).

[Névot1980] L. Névot & P. Croce, (1980). "Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons X. Application à l'étude du polissage de quelques verres silicates". *Revue de Physique Appliquée (Paris)*, **15**(3), pp. 761–779.

[Niemann1976] B. Niemann, D. Rudolph & G. Schmahl, (1976). "X-ray microscopy with synchrotron radiation". *Appl. Opt.*, **15**(8), pp. 1883–1884.

[Parratt1954] L. G. Parratt, (1954). "Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays". *Phys. Rev.*, **95**, pp. 359–369.

[Picart1995] P. Picart. **Contribution au contrôle de surfaces planes et sphériques de précision nanométrique**. Thèse, Université Paris Sud - Paris XI, Décembre 1995.

[Prasciolu2014] M. Prasciolu, A. F. G. Leontowich, K. R. Beyerlein & S. Bajt, (2014). "Thermal stability studies of short period Sc/Cr and Sc/B_4C/Cr multilayers". *Appl. Opt.*, **53**(10), pp. 2126–2135.

[Rizzi2013] J. Rizzi, P. Mercère, M. Idir, P. D. Silva, G. Vincent & J. Primot, (2013). "X-ray phase contrast imaging and noise evaluation using a single phase grating interferometer". *Opt. Express*, **21**(14), pp. 17340–17351.

[Sandberg2007] R. L. Sandberg, A. Paul, D. A. Raymondson, S. Hädrich, D. M. Gaudiosi, J. Holtsnider, R. I. Tobey, O. Cohen, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, C. Song, J. Miao, Y. Liu & F. Salmassi, (2007). "Lensless Diffractive Imaging Using Tabletop Coherent High-Harmonic Soft-X-Ray Beams". *Phys. Rev. Lett.*, **99**, p. 098103.

[Schäfers1998] F. Schäfers, H.-C. Mertins, F. Schmolla, I. Packe, N. N. Salashchenko & E. A. Shamov, (1998). "Cr/Sc multilayers for the soft-x-ray range". *Appl. Opt.*, **37**(4), pp. 719–728.

[Schäfers2003] F. Schäfers, S. A. Yulin, T. Feigl & N. Kaiser. "At-wavelength metrology on Sc-based multilayers for the UV and water window", *Proc. SPIE*, **5188**, pp. 138–145, (2003).

[Schmahl1978] G. Schmahl, D. Rudolph & B. Niemann, (1978). "X-ray microscopy of biological specimens". *J. Phys. Colloques*, **39**, pp. C4–202–C4–204.

[Seely1994] J. F. Seely, C. M. Brown, G. E. Holland, R. W. Lee, J. C. Moreno, B. J. MacGowan, C. A. Back, L. B. Da Silva & A. S. Wan, (1994). "Imaging of laser-irradiated targets at a wavelength of 33.8 Å using a normal-incidence multilayer mirror". *Physics of Plasmas*, **1**(6), pp. 1997–2002.

[Shealy1993] D. L. Shealy, C. Wang, W. Jiang, L. Jin & R. B. Hoover. "Design and analysis of a fast two-mirror soft x-ray microscope", *Proc. SPIE*, **1741**, pp. 20–31, (1993).

[Skulina1994] K. Skulina, C. Alford, R. Bionta, D. Makowiecki, E. Gullikson, R. Soufli, J. Kortright & J. Underwood. Beryllium based multilayers for normal incidence extreme ultraviolet reflectance. Présenté à : Optical Society of America Conference on Extreme Ultraviolet Lithography, Monterey, CA, 19-21 Sep. 1994, Novembre 1994.

[Sorrentino2015] A. Sorrentino, J. Nicolás, R. Valcárcel, F. J. Chichón, M. Rosanes, J. Avila, A. Tkachuk, J. Irwin, S. Ferrer & E. Pereiro, (2015). "MISTRAL : a transmission soft X-ray microscopy beamline for cryo nano-tomography of biological samples and magnetic domains imaging". *Journal of Synchrotron Radiation*, **22**(4), pp. 1112–1117.

[Soufli2008] R. Soufli, A. L. Aquila, F. Salmassi, M. Fernández-Perea & E. M. Gullikson, (2008). "Optical constants of magnetron-sputtered boron carbide thin films from photoabsorption data in the range 30 to 770 eV". *Appl. Opt.*, **47**(25), pp. 4633–4639.

[Soufli2012] R. Soufli, M. Fernández-Perea, S. L. Baker, J. C. Robinson, E. M. Gullikson, P. Heimann, V. V. Yashchuk, W. R. McKinney, W. F. Schlotter & M. Rowen, (2012). "Development and calibration of mirrors and gratings for the soft x-ray materials science beamline at the Linac Coherent Light Source free-electron laser". *Appl. Opt.*, **51**(12), pp. 2118–2128.

[Spiller1972] E. Spiller, (1972). "Low-Loss Reflection Coatings Using Absorbing Materials". *Applied Physics Letters*, **20**(9), pp. 365–367.

[Spiller1976] E. Spiller, (1976). "Reflective multilayer coatings for the far uv region". *Appl. Opt.*, **15**(10), pp. 2333–2338.

[Stollberg2006] H. Stollberg, S. Yulin, P. A. C. Takman & H. M. Hertz, (2006). "High-reflectivity Cr/Sc multilayer condenser for compact soft x-ray microscopy". *Review of Scientific Instruments*, **77**(12).

[Takacs1997] P. Takacs, K. Furenlid & L. Furenlid. "X-ray-induced damage observations on ZERODUR mirrors", *Proc. SPIE*, **3152**, pp. 77–85, (1997).

[Takenaka1995] H. Takenaka, T. Kawamura, T. Haga, H. Kinoshita & Y. Ishii, (1995). "Evaluation of Large-Area Mo/Si Multilayer Soft X-Ray Mirrors Fabricated by RF Magnetron Sputtering". *Japanese Journal of Applied Physics*, **34**(9R), p. 5027.

[Takman2007a] P. A. C. Takman, H. Stollberg, G. A. Johansson, A. Holmberg, M. Lindblom & H. M. Hertz, (2007). "High-resolution compact X-ray microscopy". *Journal of Microscopy*, **226**(2), pp. 175–181.

[Takman2007b] P. Takman. **Compact Soft X-Ray Microscopy Sources, Optics and Instrumentation**. Thèse, KTH, Stockholm, 2007.

[Thibault2008] P. Thibault, M. Dierolf, A. Menzel, O. Bunk, C. David & F. Pfeiffer, (2008). "High-Resolution Scanning X-ray Diffraction Microscopy". *Science*, **321**(5887), pp. 379–382.

[Thieme1994] J. Thieme, J. Niemeyer, P. Guttmann, T. Wilhein, D. Rudolph & G. Schmahl. X-ray microscopy studies of aqueous colloid systems, pp. 135–138. Steinkopff, Darmstadt, 1994.

[Thompson2009] A. Thompson & al. (Center for X-Ray Optics ; Advanced Light Source). *X-ray Data Booklet*. Lawrence Berkeley National Laboratory Pub–490, Rev. 3, 2009.

[Turner1950] A. F. Turner, (1950). "Some current developments in multilayer optical films". *J. Phys. Radium*, **11**(7), pp. 444–460.

[Underwood1986] J. H. Underwood, (1986). "High-energy x-ray microscopy with multilayer reflectors (invited)". *Review of Scientific Instruments*, **57**(8), pp. 2119–2123.

[Underwood1987] J. H. Underwood, M. E. Bruner, B. M. Haisch, W. A. Brown & L. W. Acton, (1987). "X-ray Photographs of a Solar Active Region with a Multilayer Telescope at Normal Incidence". *Science*, **238**(4823), pp. 61–64.

[Underwood1998] J. Underwood & E. Gullikson, (1998). "High-resolution, high-flux, user friendly VLS beamline at the ALS for the 50–1300 eV energy region". *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, **92**(1–3), pp. 265–272.

[Uspenskii2007] Y. Uspenskii, D. Burenkov, T. Hatano & M. Yamamoto, (2007). "Optimal Design of Multilayer Mirrors for Water-Window Microscope Optics". *Optical Review*, **14**(1), pp. 64–73.

[Vartiainen2016] I. Vartiainen, I. Mohacsi, K. Stachnik, M. Guizar-Sicairos, C. David & A. Meents, (2016). "Zernike x-ray ptychography". *Opt. Lett.*, **41**(4), pp. 721–724.

[Vignaux2009] G. Vignaux. L'aventure du corps, chapitre XI : "Le XVIIe siècle : Les progrès de la raison". HISTOIRE. Pygmalion, 2009.

[Wachulak2010] P. Wachulak, A. Bartnik, H. Fiedorowicz, P. Rudawski, R. Jarocki, J. Kostecki & M. Szczurek, (2010). ""Water window" compact, table-top laser

plasma soft X-ray sources based on a gas puff target". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, **268**(10), pp. 1692 – 1700.

[Widdop1953] M. E. Widdop, (1953). "Review of Work on Dichroic Mirrors and Their Light-Dividing Characteristics". *Journal of the Society of Motion Picture and Television Engineers*, **60**(4), pp. 357–366.

[Windt1998] D. L. Windt, (1998). "IMD—Software for modeling the optical properties of multilayer films". *Computers in Physics*, **12**(4), pp. 360–370.

[Windt2002] D. L. Windt, E. M. Gullikson & C. C. Walton, (2002). "Normal-incidence reflectance of optimized W/B_4C x-ray multilayers in the range 1.4 nm $< \lambda <$ 2.4 nm". *Opt. Lett.*, **27**(24), pp. 2212–2214.

[Wolter1952] H. Wolter, (1952). "Spiegelsysteme streifenden Einfalls als abbildende Optiken für Röntgenstrahlen". *Annalen der Physik*, **445**(1-2), pp. 94–114.

université PARIS-SACLAY

ÉCOLE DOCTORALE
Ondes et Matière (EDOM)

Titre : Microscope X dans la fenêtre de l'eau : conception, miroirs à revêtements multicouches et métrologie associée

Mots clés : microscopie X, fenêtre de l'eau, miroirs multicouches, design optique

Résumé : L'observation d'échantillons biologiques à une échelle nanométrique est actuellement un thème majeur pour la biologie. En particulier, la microscopie à rayons X dans la fenêtre de l'eau (entre les seuils d'absorption K-α de l'oxygène et du carbone, soit entre 2,4 et 4,4 nm de longueur d'onde) présente un intérêt remarquable car elle permet à la fois l'observation d'échantillons biologiques avec un fort contraste d'absorption naturel, mais également une haute résolution grâce à la courte longueur d'onde d'utilisation. Plusieurs microscopes basés sur des composants diffractifs ont d'ores et déjà été développés et ont montré une résolution allant jusqu'à 12 nm. Dans ce contexte, nous développons au Laboratoire Charles Fabry un microscope X plein champ à miroirs en incidence proche de la normale. Le schéma optique du microscope a dans un premier temps été étudié et optimisé. Il est basé sur un objectif de Schwarzschild, et dispose donc d'une longue distance de travail ce qui permettra de faciliter l'installation de l'échantillon à observer. Les miroirs doivent être traités avec un revêtement multicouche à très faible période à base de chrome et de scandium. Différentes études de revêtements multicouches à couches sub nanométrique ont été réalisées pour maximiser la réflectivité des revêtements à une longueur d'onde proche de 3,14 nm. Une réflectivité pic de plus de 23% a notamment été mesurée pour un angle d'incidence inférieur à 5°. Enfin, les substrats ont été polis par l'atelier d'optique et mesurés. Le montage mécanique a été étudié par le bureau d'étude de l'atelier de mécanique pour permettre une tenue et un réglage à l'échelle nanométrique du microscope.

Title : X-ray microscope in the water-window : design, multilayer mirrors and associated metrology

Key words : X-ray microscopy, water-window, multilayer mirrors, optical design

Abstract : The observation of biological samples at a nanometer scale is currently a major topic for biology. In particular, X-ray microscopy in the water-window (between Oxygen and Carbon K-α edges, corresponding to a wavelength between 2.4 and 4.4 nm) is off remarkable interest since it enables the visualization of biological samples with a natural high absorption contrast and a high resolution thanks to the short working wavelength. Several such x-ray microscopes have already been developed and showed resolutions down to 12 nm. In this context, we develop at Laboratoire Charles Fabry a full field, near normal incidence mirror based X-ray microscope. The optical design of the microscope was studied and optimized in a first place. It is based on a Schwarzschild objective, with a rather long working distance so that the installation of the sample will be facilitated. The mirrors are to be coated with very short period multilayer coatings containing chromium and scandium. Several studies of multilayer coating with sub-nanometer thick layers have been carried out in order to obtain the highest reflectance possible near normal incidence at a wavelength near 3.14 nm. A peak reflectance of 23% has been measured for an incidence angle lower than 5°. Finally, the substrates for the mirrors have been polished by the optics workshop and measured. The mechanical drawing has been studied by the mechanics workshop in order to hold and align the microscope with a nanometer scale precision.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France