



**HAL**  
open science

# Modélisation numérique et caractérisation des défauts dans les miroirs multicouches en vue de leur application en imagerie X cohérente.

Pierre Piault

► **To cite this version:**

Pierre Piault. Modélisation numérique et caractérisation des défauts dans les miroirs multicouches en vue de leur application en imagerie X cohérente.. Optique [physics.optics]. Université Paris Saclay (COmUE), 2019. Français. NNT : 2019SACLO008 . tel-02297901

**HAL Id: tel-02297901**

**<https://pastel.hal.science/tel-02297901v1>**

Submitted on 26 Sep 2019

**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.

# Modélisation numérique et caractérisation des défauts dans les miroirs multicouches en vue de leur application en imagerie X cohérente

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay  
préparée à Institut d'optique théorique et appliquée

Ecole doctorale n°572 Dénomination (EDOM)  
Spécialité de doctorat : Physique

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 20 Juin 2019, par

**PIERRE ETIENNE PIAULT**

Composition du Jury :

Sophie Kazamias Professeure, Université Paris-Sud (Laboratoire de l'Accélérateur Linéaire - LASERIX)	Présidente
Olivier Thomas Professeur, Aix-Marseille Université (Institut Matériaux Microélectronique Nanoscience de Provence)	Rapporteur
Manuel Sanchez del Rio Chercheur HDR, European Synchrotron Radiation Facility - ESRF Alexander Rack	Rapporteur
Chercheur, European Synchrotron Radiation Facility - ESRF (Structure of Materials Group - ID19, S-19)	Examineur
Franck Delmotte Professeur, Institut d'Optique Graduate School (Laboratoire Charles Fabry)	Directeur de thèse
Eric Ziegler Chercheur, European Synchrotron Radiation Facility - ESRF (BM05)	Co-encadrant de thèse





Cette thèse a été effectuée principalement à l'ESRF au sein de l'équipe BM05. Je remercie donc l'ESRF d'avoir permis ce travail de thèse ainsi que les membres de l'équipe BM05 pour leurs contributions dans cette recherche.



Je tiens également à remercier l'Institut d'Optique Graduate School de Palaiseau de son soutien sans lequel il m'aurait été impossible de défendre mon travail de thèse.

Ce travail de thèse a été riche en événements, en rencontres et en rebondissements. Je veux exprimer ma gratitude à toutes ces personnes que j'ai rencontrées et qui ont été présentes dans les bons et mauvais moments.

Je souhaite dédier cette thèse à Claudio Ferrero, décédé le 24 Mai 2018. Aucun mot ne sera assez fort pour exprimer toute ma gratitude et mon respect pour son implication ainsi que l'amitié que j'ai partagée avec lui.  
J'aurais tant aimé lui dire : c'est fait ...



# Préface

*Les multicouches, assemblage artificiel de couches minces à l'échelle du nanomètre, trouvent de nombreuses applications dont celle de miroir. Dans le domaine des rayons X, les miroirs multicouches sont très largement utilisés du fait de leurs performances et leur modularité. Naturellement on retrouve ce type de miroir dans les sources de rayons X cohérentes comme les synchrotrons ou les lasers à électrons libres (XFEL en anglais pour X-ray Free Electron Laser). La modularité dans la fabrication des multicouches produit des miroirs adaptés aux nombreuses techniques expérimentales de pointe des synchrotrons ou XFEL. Avec un faisceau incident blanc, le flux de photons X réfléchi est jusqu'à cent fois plus important avec des miroirs multicouches qu'avec les cristaux comme le silicium (lui aussi largement utilisé dans les synchrotrons). Cette différence est due à la largeur de la bande passante des multicouches largement plus grande que celle des cristaux. Ces performances de réflectivité sont alors importantes pour toutes les techniques d'imagerie cohérente de rayons X. Or l'imagerie X cohérente s'applique dans de nombreux domaines tels que la médecine, la paléontologie, la microélectronique ou l'énergie...*

*Dans le contexte de rédaction de cette thèse l'European Synchrotron Radiation Facility de Grenoble (appelé ESRF) avait commencé un programme d'amélioration dénommé EBS pour Extremely Brilliant Source (source de lumière extrêmement brillante). L'objectif est la construction d'un nouvel anneau de stockage pour une amélioration de la cohérence et de la brillance des faisceaux de rayons X. De nouveaux challenges s'imposent pour l'instrumentation d'une manière générale et pour les optiques X en particulier. Les miroirs multicouches ont dans ce contexte un grand potentiel de développement. La problématique principale des miroirs multicouches est l'apparition dans le faisceau X réfléchi, de motifs d'intensité en forme de lignes. Ces motifs généralement appelés "lignes d'intensité" ou "stripes lines intensity" sont préjudiciables pour l'imagerie et augmentent avec la cohérence de la source de rayons X. Pour la fabrication des multicouches dans le futur, ce problème de lignes d'intensité devait être étudié. Premièrement des études qualitatives et comparatives de*

*miroirs multicouches ont confirmé que ce problème était intrinsèque aux miroirs multicouches. Ce manuscrit de thèse décrit la poursuite de ces études par l'élaboration de modèles numériques et de mesures expérimentales en vue de déterminer les origines et les phénomènes responsables des lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi par les multicouches.*

*Ce document décrit les travaux de modélisation et de caractérisation des miroirs multicouches et de leurs défauts. Outre la production d'un modèle numérique et son utilisation dans des simulations, la validation du modèle a été faite par la reproduction numérique des lignes d'intensité. Cela a exigé le développement d'une nouvelle partie expérimentale pour la caractérisation des défauts.*

*L'originalité de ces caractérisations expérimentales vient de la première application aux multicouches de techniques de pointe existantes au synchrotron ESRF. La multiplicité des techniques expérimentales se justifie par l'incertitude de succès de ce travail pionnier.*

*Les techniques de Rocking Curve Imaging (RCI),  $\theta/2\theta$  Imaging, Tavelures en champ proche et Holographie ont permis des résultats, dont certains ont pu être exploités dans la modélisation numérique. Des résultats de RCI et d'imagerie  $\theta/2\theta$  ont été obtenus avec les premières mesures de ce type pour les multicouches. Ce travail pionnier (de RCI et d'imagerie  $\theta/2\theta$ ) pour les multicouche, a montré les difficultés d'adaptation aux multicouches, mais a permis de comprendre certaines problématiques expérimentales et, une solution est proposée pour déboucher sur des configurations expérimentales plus favorables aux caractérisations futures des multicouches. C'est pourquoi, elles sont développées et commentées.*

*La modélisation numérique utilisée dans cette thèse est une théorie originale dans la modélisation de multicouches. Des modules complémentaires de propagation et de cohérence spatiale de source ont été ajoutés pour se rapprocher des situations expérimentales. Avec cet ensemble de modèles, des simulations de cas simples et de cas issus de mesure de tavelures en champ proche sont présentés.*

*Les résultats montrent une bonne reproduction des lignes d'intensité et des analogies intéressantes avec les résultats de solutions analytiques. Ces dernières simplifient les problèmes de modélisation.*

*Cet ouvrage de thèse tente d'aborder de manière équilibrée la variété des travaux mis en œuvre qui vont de la caractérisation expérimentale et de son analyse à la modélisation numérique, puis à la simulation.*

*L'introduction à la problématique des miroirs multicouches (chapitre 1) est suivie d'une partie expérimentale où le lecteur trouvera les bases fondamentales des techniques utilisées (chapitre 2) et les résultats des analyses expérimentales (chapitre 3). La partie théorique (chapitre 4) détaille les calculs des équations de Takagi-Taupin afin de fournir les bases nécessaires à la compréhension des chapitres*

*suivants.*

*Le chapitre 5 présente les modifications et les extensions apportées pour reproduire les lignes d'intensité. Les simulations effectuées et leurs interprétations sont détaillées dans le chapitre 6. Le chapitre 7 présente les conclusions et les perspectives de ce travail de thèse.*



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Miroir multicouche pour rayons X</b>	<b>14</b>
1.1	Introduction . . . . .	15
1.2	Les multicouches . . . . .	16
1.2.1	Principe des miroirs multicouches . . . . .	16
1.2.2	Conception de miroirs multicouches . . . . .	18
1.2.3	Fabrication des miroirs multicouches . . . . .	20
1.3	État de l'art sur les multicouches . . . . .	22
1.3.1	Challenge de fabrication . . . . .	22
1.3.2	Méthode de caractérisation . . . . .	27
1.3.3	Motivation d'étude des lignes d'intensité des multicouches . . . . .	30
1.4	Plan du manuscrit de thèse . . . . .	34
<b>2</b>	<b>Techniques de caractérisation de miroir multicouche</b>	<b>36</b>
2.1	Introduction . . . . .	37
2.2	Étude des multicouches par interférométrie Fizeau . . . . .	38
2.3	Caractérisation des multicouches par imagerie X en diffraction de Bragg . . . . .	39
2.3.1	"Rocking Curve Imaging" . . . . .	40
2.3.2	" $\theta/2\theta$ Imaging" . . . . .	42
2.4	Caractérisation par contraste de phase des multicouches . . . . .	45
2.4.1	Méthode de reconstruction holographique . . . . .	46
2.4.2	Méthode de reconstruction de front d'onde par tavelures en champ proche . . . . .	48
2.5	Caractéristiques de la ligne de lumière BM05 . . . . .	52
<b>3</b>	<b>Résultats expérimentaux</b>	<b>54</b>
3.1	Introduction . . . . .	55
3.2	Principales multicouches caractérisées . . . . .	56
3.3	Observation des lignes d'intensité sur BM05 . . . . .	57

3.3.1	Effets des distances de propagation et qualité du substrat . . . . .	57
3.3.2	Rotations des multicouches . . . . .	60
3.3.3	Origine du contraste en forme de ligne . . . . .	62
3.4	Imagerie par diffraction de Bragg . . . . .	63
3.4.1	Différences entre cristaux et multicouches . . . . .	64
3.4.2	Image du faisceau diffracté . . . . .	65
3.4.3	Traitement et analyse des données . . . . .	65
3.4.4	Résultat $\theta/2\theta$ : multicouche 091116 . . . . .	67
3.4.5	Résultat RCI : multicouche 091116 . . . . .	70
3.4.6	Conclusion imagerie par diffraction de Bragg . . . . .	73
3.5	Méthode des tavelures en champ proche . . . . .	74
3.5.1	Mesures des tavelures . . . . .	74
3.5.2	Résultats . . . . .	75
3.5.3	Conclusion méthode des tavelures en champ proche . . . . .	80
3.6	Holographie . . . . .	83
3.6.1	Mesures par Holographie . . . . .	83
3.6.2	Résultats . . . . .	84
3.7	Conclusion des mesures de caractérisation . . . . .	85
<b>4</b>	<b>Modélisation numérique des multicouches par l'approche Takagi Taupin</b>	<b>88</b>
4.1	Introduction . . . . .	89
4.2	Équations de Takagi-Taupin . . . . .	90
4.2.1	Description du choix de la théorie de Takagi-Taupin . . . . .	90
4.2.2	Équations fondamentales . . . . .	92
4.3	Réfraction dans l'équation de Bragg . . . . .	95
4.3.1	Effet de réfraction . . . . .	95
4.3.2	Modification des conditions de Bragg . . . . .	95
4.4	Résolution numérique des équations de Takagi-Taupin . . . . .	97
4.4.1	Conditions aux limites . . . . .	97
4.4.2	Méthode de résolution numérique . . . . .	98
4.4.3	Limites et approximations du modèle . . . . .	101
<b>5</b>	<b>Extension du modèle numérique</b>	<b>104</b>
5.1	Introduction . . . . .	105
5.2	Implémentation des défauts . . . . .	106
5.2.1	Champ de déplacement de la structure, introduit par les écarts de hauteur . . . . .	106
5.2.2	Simulation de multicouche dans le volume et cartographie des hauteurs . . . . .	107

5.2.3	Test d'implémentation et commentaire sur le modèle	108
5.3	Propagation et détecteur	110
5.3.1	Méthode d'implémentation	111
5.3.2	Test d'implémentation	116
5.3.3	Commentaire sur le module de propagation	117
5.4	Cohérence du faisceau	118
5.4.1	Implémentation numérique	119
5.4.2	Commentaire sur le module des largeurs de cohérence	120
5.5	Conclusion intermédiaire sur le modèle	123
<b>6</b>	<b>Simulations</b>	<b>130</b>
6.1	Introduction	131
6.2	Préambule aux simulations	132
6.3	Simulation de défaut simple	132
6.3.1	Descriptif des simulations	133
6.3.2	Simulation avec défauts de type créneau	134
6.3.3	Simulation avec défaut sinusoïdal	139
6.3.4	Comparaison des intensités mesurées avec les distances de propagation	144
6.3.5	Conclusion des premières simulations	146
6.4	Simulations pour la recherche des défauts de hauteur	147
6.4.1	Procédé itératif de reconstruction de défaut	148
6.4.2	Résultats miroirs 091116, 091124 et 170906	151
6.4.3	Conclusion des résultats	154
6.5	Propagation des ondes réfléchies	156
6.5.1	Résultats des miroirs 091116, 091124 et 170906	156
6.5.2	Conclusion des résultats	161
6.6	Conclusion du modèle	161
<b>7</b>	<b>Conclusion</b>	<b>164</b>
7.1	Conclusions générales	165
7.1.1	Discussions	165
7.1.2	Perspectives	169
	<b>Annexes</b>	<b>172</b>
<b>A</b>	<b>Modélisation de multicouche avec la solution analytique des équations de Takagi-Taupin</b>	<b>172</b>
A.1	Principe de modélisation	173
A.2	solution analytique des équations de Takagi-Taupin	174

<b>B</b>	<b>Résultats Imagerie par diffraction de Bragg multicouche 091124</b>	<b>178</b>
B.1	Image du faisceau diffracté . . . . .	179
B.1.1	Configuration expérimentale . . . . .	179
B.1.2	Paramètres de la mesure du miroir 091124 . . . . .	179
B.2	Résultat imagerie $\theta/2\theta$ : multicouche 091124 . . . . .	179
B.2.1	Comparaison résultats imagerie $\theta/2\theta$ 091116 et 091124	180
B.3	Résultat RCI : multicouche 091124 . . . . .	182
<b>C</b>	<b>Imagerie par diffraction de Bragg : traitements des données et contraintes</b>	<b>184</b>
C.1	Traitements des données numériques à appliquer : RCI . . .	185
C.2	Contraintes dans la mesure RCI . . . . .	188
C.3	Traitements des données numériques à appliquer $\theta/2\theta$ Imaging . . . . .	190
C.4	Contraintes dans la mesure $\theta/2\theta$ Imaging . . . . .	191
C.5	Différents types de défaut rencontrés . . . . .	192
<b>D</b>	<b>Solution expérimentale à la RCI pour les multicouches</b>	<b>198</b>
D.1	Solution expérimentale . . . . .	199
<b>E</b>	<b>Guide d'utilisation et Nouvelles variables</b>	<b>202</b>
E.1	Détails d'utilisation pour les simulations . . . . .	203
E.1.1	Généralités sur les simulations . . . . .	203
E.1.2	Simulation des multicouches avec défauts . . . . .	203
E.1.3	Simulation de propagation des résultats de tt-int . . .	206
E.1.4	Simulation avec la cohérence spatiale de la source . .	206
E.2	Nouvelles variables . . . . .	207
E.3	Exemple . . . . .	209
	<b>Bibliographie</b>	<b>211</b>



# **Chapitre 1**

## **Miroir multicouche pour rayons X**



*Ces colonnes sous-marines sont formées par des bulles de méthane prisonnières des eaux gelées.*

## 1.1 Introduction

Les optiques pour rayons X incluent les lentilles, les miroirs ou les filtres qui permettent de manipuler la lumière. Les rayons X sont des photons dont la longueur d'onde se situe entre  $10^{-3}$  et 10 nanomètres ( $10^{-12} \rightarrow 10^8 m$ ) et ont une énergie comprise entre 100 eV et 1 MeV. Plus leur énergie est élevée plus ils peuvent traverser la matière. Les optiques pour rayons X doivent tenir compte de ces propriétés de pénétration pour agir sur le faisceau de rayons X. Le principe de la diffraction en est un.

Les rayons X ayant de nombreuses applications dans la recherche actuelle et dans l'industrie, des sources X toujours plus performantes telles que les synchrotrons sont développées et continuellement améliorées. Par voie de conséquence, les optiques de rayons X doivent aussi être plus performantes.

Ces optiques peuvent être des cristaux, très largement utilisés, ou des multicouches. Les miroirs multicouches pour les rayons X et les neutrons ont commencé à être utilisés dans les années 1980. Ce travail de thèse s'intéresse aux miroirs multicouches dont le principal avantage est le flux de photons X réfléchi. La possibilité d'ajuster la distance entre les plans diffractants (entre 10 et 2 nm) est avantageuse par rapport aux cristaux pour lesquels la taille de mailles possible est limitée aux cristaux disponibles : Si, Ge, etc ...

Les miroirs multicouches pour rayons X ont démontré leur potentiel pour les applications d'imagerie par rayons X dans les synchrotrons [1, 2].

Cependant, avec l'avènement de sources d'émission de plus en plus faibles, les faisceaux sont devenus plus cohérents. Les faisceaux réfléchis par les miroirs multicouches actuels sont alors spatialement inhomogènes dûs à la présence de lignes d'intensité.

Ce chapitre permet d'introduire le sujet du travail de recherche effectué. Après un rappel du principe des miroirs multicouches, des méthodes de

fabrication et des exemples de caractérisation de miroirs multicouches sont présentés. Les motivations d'étude des miroirs multicouches sont commentées avec une présentation d'un résumé des connaissances sur les lignes d'intensité au commencement de cette thèse. Les choix de modélisation numérique des miroirs multicouches sont justifiés.

## 1.2 Les multicouches

### 1.2.1 Principe des miroirs multicouches

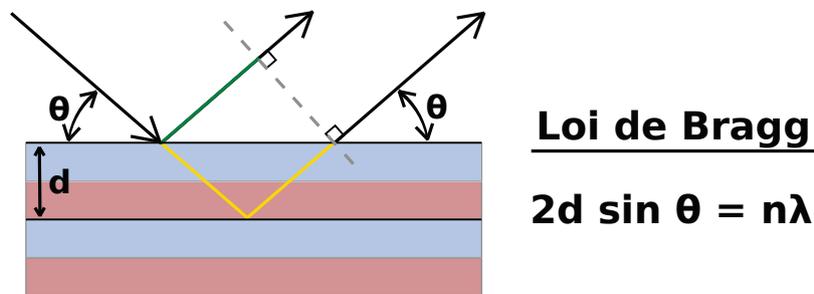


FIGURE 1.1 – Principe de réflexion d'un miroir multicouche, une bicouche composée de deux matériaux (rouge et bleu) à une épaisseur  $d$ . La loi de Bragg est définie de telle façon que, la différence de phase induite par la différence de chemin optique (vert et jaune) des faisceaux réfléchis soit de  $2\pi$  en fonction de l'épaisseur de bicouche  $d$ ,  $n$  l'ordre de diffraction,  $\lambda$  la longueur d'onde et  $\theta$  l'angle de réflexion.

Les miroirs sont des optiques réfléchissantes. Depuis environ six mille années avant Jésus-Christ, des roches polies comme l'obsidienne (verre volcanique naturel) sont utilisées pour confectionner des miroirs. Des métaux polis tels que le bronze, le cuivre, l'argent ou l'or ont été utilisés deux mille ans plus tard. Les améliorations continues avec des verres métallisés et d'autres techniques de fabrication voient le jour à la fois en Europe mais aussi en Chine.

Aujourd'hui les miroirs sont encore sujets à des améliorations, en particulier avec le développement de nouveaux domaines de la physique. C'est ainsi que les miroirs multicouches apparus dans les années 1980, ont trouvé une utilisation importante dans le domaine des rayons X. En effet, les optiques adaptées aux rayons X doivent tenir compte de leur pouvoir de pénétration dans la matière. Un miroir avec une seule interface entre l'air et le matériau du miroir peut produire une réflexion, en fonction de

l'énergie du faisceau et de la valeur de l'angle d'incidence par rapport à la surface du miroir. Les lois de Snell-Descartes permettent de définir l'angle critique, par rapport à la rasance,  $\theta_c = \sqrt{2\delta}$  en dessous duquel la réflexion est totale ;  $\delta$  correspondant au décrément à l'unité pour la partie réelle de l'indice optique  $n = 1 - \delta + i\beta$ . Dans le domaine des rayons X , cet angle critique est très faible de même que le coefficient de réflexion produit par une seule interface. Au-delà de cet angle et selon l'épaisseur totale de la multicouche, les rayons X traversent le matériau du miroir en étant partiellement ou totalement absorbés.

Cependant, alors qu'une interface permet de réfléchir une très faible fraction d'un faisceau, la multiplication des interfaces peut augmenter le pouvoir réfléchissant du miroir, à condition que celles-ci soient correctement positionnées de manière à pouvoir générer un effet d'interférences constructives. Dans ce cas les amplitudes des ondes réfléchies sur les différentes interfaces s'additionnent. Ces interfaces sont produites par l'alternance de deux matériaux aux indices optiques différents, en formant alors des empilements de bicouches.

La réflexion n'est plus produite via une seule interface mais globalement dans un volume. C'est-à-dire que différents chemins optiques sont possibles pour les ondes réfléchies par les différentes interfaces. Cela établit des contraintes dans la construction des bicouches définies par la loi de Bragg (figure (1.1)).

La loi de Bragg donne les conditions de réflexion liant la longueur d'onde, l'angle d'incidence et l'épaisseur de la bicouche (c'est-à-dire la période de la multicouche) pour que toutes les ondes réfléchies (peu importe l'interface) soient en phase. Dans les autres cas, la somme complexe de ces ondes réfléchies réduira l'intensité totale réfléchie jusqu'à être nulle si les ondes sont en opposition de phase.

La réflectivité d'un miroir multicouche dépend de l'énergie des photons à réfléchir et de l'angle de réflexion (en vertu des positions des pics de réflectivité donnés par la loi de Bragg).

La réflectivité angulaire d'une multicouche (figure (1.2)), montre plusieurs pics de réflectivité correspondants aux ordres de diffraction de la loi de Bragg.

Entre les principaux pics de réflexion, se trouvent des franges dites de "Kiessig" qui sont produites par les interférences des faisceaux, réfléchies par le substrat et par la surface du dépôt [4].

Un pic de réflexion peut être décrit par sa réflectivité maximale, sa réflectivité intégrée et sa largeur ; le choix des paramètres (matériaux , épaisseur

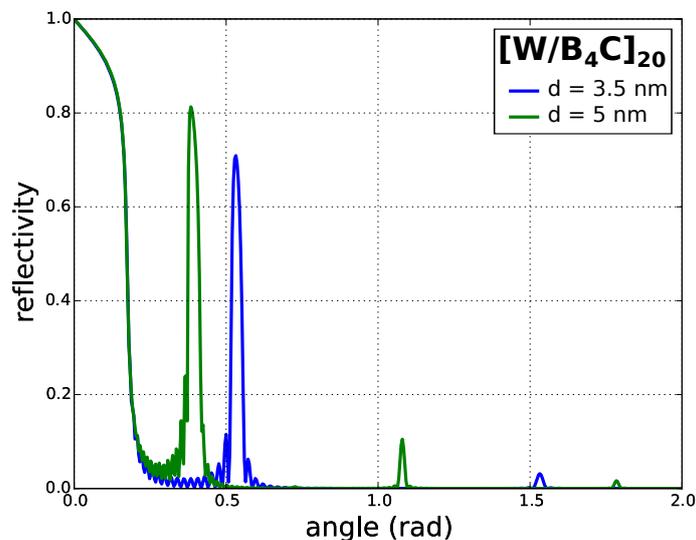


FIGURE 1.2 – Courbes de réflectivité, obtenues avec [3], pour une multicouche  $[W/B_4C]_{20}$  avec 20 bicouches à une énergie de 20 keV selon différentes épaisseurs de bicouches notées  $d$ .

de couche, nombre de couches ...) d'un miroir multicouche se fait en fonction des caractéristiques souhaitées pour la courbe de réflexion. En effet, les paramètres du miroir multicouche affectent non seulement les angles de réflexion mais aussi la forme des pics.

## 1.2.2 Conception de miroirs multicouches

D'une manière générale, les deux matériaux utilisés doivent être choisis de manière à avoir des indices optiques suffisamment différents pour une bonne réflectivité. Un des matériaux joue le rôle de réflecteur et l'autre d'espaceur.

Le premier a besoin d'une densité électronique importante (grand numéro atomique  $Z$ , et donc relativement absorbant) pour une plus grande réflectivité. Un petit numéro atomique est préférable pour le second matériau, ce afin de limiter l'absorption. Si plusieurs possibilités existent, le matériau réflecteur avec l'absorption la plus faible est préféré. Enfin, il est nécessaire de s'assurer de la stabilité et de la qualité des interfaces entre les matériaux choisis [5].

Le choix de la période de la multicouche est établi en vertu de la loi de Bragg et de contraintes géométriques, (car les angles rasants des mi-

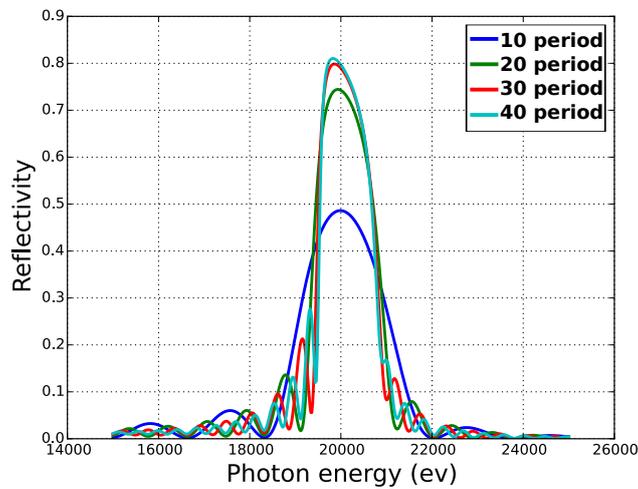


FIGURE 1.3 – Évolution de la réflectivité du 1er pic de Bragg d'une multicouche  $[W/B_4C]$  de période 3.75 nm en fonction du nombre de périodes. La réflectivité augmente avec le nombre de périodes jusqu'à atteindre un niveau de saturation. (obtenue avec [3])

roirs multicouches conduisent à des longueurs de miroir importantes). Un grand miroir augmente les surfaces de polissage et de dépôt ainsi que les coûts de fabrication.

La réflectivité maximale augmente avec le nombre de bicouches, jusqu'à atteindre une limite liée à l'extinction de l'onde incidente dans la structure multicouche (figure (1.3)). La largeur du pic de réflexion diminue avec un plus grand nombre de bicouches, jusqu'à atteindre la limite liée à l'extinction de l'onde incidente.

Cette largeur de pic peut être un critère de sélection important si le miroir multicouche est utilisé comme élément de monochromateur. C'est-à-dire lorsque le miroir est utilisé comme un filtre (sélecteur) d'énergie des photons issus d'un faisceau avec un large spectre d'énergie (comme c'est le cas du rayonnement émis par un aimant de courbure dans les sources synchrotrons). Le spectre d'énergie du faisceau réfléchi (filtré) est centré sur l'énergie correspondante aux conditions de Bragg et sa largeur dépend de la largeur du pic de réflectivité. La réflectivité intégrée d'un miroir multicouche permet de déterminer le flux de photons X réfléchi. Elle est maximale pour le nombre de bicouches correspondant à l'extinction du faisceau incident dans la structure multicouche. Le choix du nombre de périodes s'optimise selon l'application.

Des variations du rapport d'épaisseur des couches de matériaux (ré-

flecteur vs espaceur), permettent d'optimiser la réflectivité [6]. En effet, l'absorption du miroir multicouche est la moyenne du pouvoir absorbant des deux matériaux, pondérée par le rapport d'épaisseur. Sur ce principe, en privilégiant les couches de réflecteur plus fines et des couches de séparateur (ou espaceur) plus épaisses, l'absorption dans la structure multicouche est réduite et la réflectivité augmente. Cependant, l'augmentation du nombre de couche et de la rugosité (qui pourrait augmenter avec le nombre de couches ou des couches trop fines), limite ce raisonnement simpliste.

Il faut aussi que les ondes réfléchies par chaque interface restent en phase et un rapport d'épaisseur optimal peut être trouvé [7]. En jouant sur ce rapport d'épaisseur il est possible de supprimer certains ordres de diffraction (en particulier avec des variations de rapport d'épaisseur selon la profondeur de la multicouche). Des miroirs avec une structure multicouche non périodique peuvent être conçus pour générer des profils de réflectivité particuliers.

Les épaisseurs de chaque couche peuvent être déterminées selon la méthode de Yamamoto [8, 9]. Le profil vertical de composition de la structure multicouche peut être adapté pour des miroirs avec une réflectivité intégrée maximale [10, 11] ou bien avec une largeur de bande de réflectivité élargie [12].

De la même manière, des structures multicouches avec un gradient latéral d'épaisseur peuvent être nécessaires (comme pour des miroirs multicouches focalisants ou dé-focalisants). En effet, les épaisseurs de bicouche doivent s'adapter aux changements d'angle d'incidence dans la structure multicouche (figure (1.4)). Dans ce cas, l'épaisseur des couches changent selon la profondeur mais aussi selon la position, à la surface de la multicouche.

### 1.2.3 Fabrication des miroirs multicouches

Il existe de nombreuses techniques de dépôt de multicouche. En 1923 Koeppé a produit des couches de  $Cd/Ag$  avec une méthode d'électrolyse, mais la structure de couche était relativement instable et se dégradait rapidement. En 1935 l'utilisation d'un procédé par évaporation thermique d'or et de cuivre a permis la production d'une multicouche, peu stable. Les améliorations de ce procédé par évaporation thermique rendront les couches plus stables pour la fabrication de miroirs multicouches pour les gammes  $UV$  et  $XUV$ . La technique de pulvérisation cathodique est connue

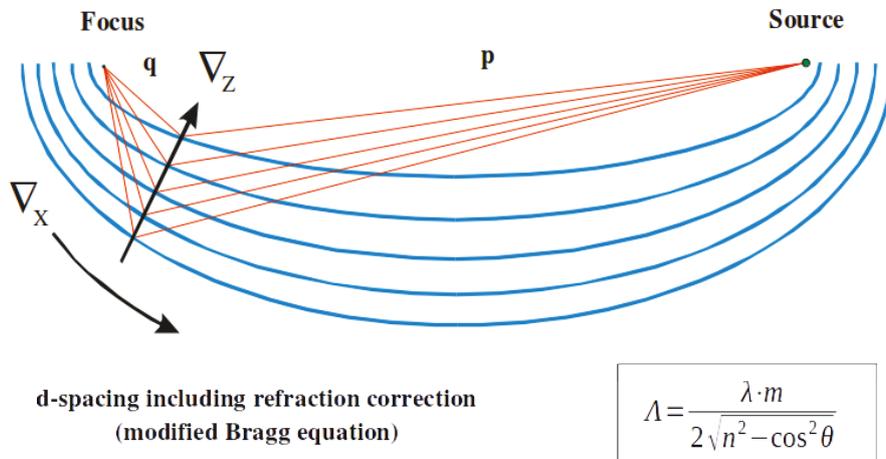


FIGURE 1.4 – *Structure multicouche non périodique pour un miroir focalisant. Les différences d'angle d'incidence induisent un gradient latéral des épaisseurs de bicouche. L'épaisseur de bicouche est calculée avec une équation de Bragg modifiée qui rend compte des réfractions dans les matériaux [13, 14, 15, 16, 17]. L'équation de Bragg modifiée sera détaillée dans le chapitre 4. Elle est une ré-écriture de l'équation de Bragg qui prend en considération l'indice optique des matériaux et de la réfraction.*

et est largement utilisée. Ce sont les progrès du début des années 1970 jusqu'aux années 90 qui ont transformé les capacités de la pulvérisation cathodique magnétron [18]. Cette technique de dépôt, connue depuis plusieurs années et capable de déposer de nombreux matériaux [19, 20] est devenue la plus répandue pour la fabrication de miroirs multicouches pour les rayons X. Le procédé de dépôt par laser pulsé [21, 22, 23] a aussi été développé.

#### Dépôt multicouche en général et à l'ESRF :

Les paramètres géométriques des multicouches et la composition des couches sont définis en fonction de différents facteurs. Il faut pour cela considérer la gamme spectrale d'utilisation mais aussi l'environnement futur du miroir soient : les risques potentiels d'altération des couches par réaction chimique et l'instabilité temporelle selon l'ambiance (air, gaz, ou vide) ou la charge thermique.

Les combinaisons de matériau les plus courantes sont par exemple, *W/Si, Mo/Si, Pd/B<sub>4</sub>C, Ni/C, Cr/Sc, W/B<sub>4</sub>C, La/B<sub>4</sub>C.*

De nombreuses autres combinaisons possibles sont mentionnées dans les références suivantes : [24, 25, 26].

Dans le cadre des rayons X, de nombreuses bicouches doivent être déposées sur des surfaces de plusieurs dizaines de centimètres (dans un monochromateur, le miroir multicouche peut atteindre un mètre de long). Des performances optimales des miroirs multicouches exigent une uniformité des couches. La tolérance sur la variation d'épaisseur est inférieure à l'Ångström (1% de la période sur 1cm).

Les principaux avantages de la technique de pulvérisation cathodique magnétron (magnetron sputtering en anglais) pour des dépôts de haute qualité, sont la stabilité du processus et les forts taux de déposition possibles. Avec ce procédé, les particules pulvérisées ont une grande vitesse et permettent d'obtenir des couches minces, à la fois denses et lisses [27]. Le laboratoire de multicouches à l'ESRF est équipé d'une machine où le dépôt de couches minces est uniforme à l'échelle du nanomètre [28, 29]. Des gradients de dépôt sont possibles par utilisation de masque et par variation de la vitesse de translation du support de miroir, par rapport à la position des cibles [30, 31].

La figure (1.5) montre la machine pouvant contenir quatre cibles de matériaux pour les dépôts. La majorité des multicouches produites pour les applications en rayons X est composée de Tungstène (W) et de Carbure de Bore ( $B_4C$ ).

L'épaisseur d'une bicouche est comprise entre 2 nm et 6 nm et une multicouche est composée de 25 à 100 bicouches. Le dépôt est généralement fait sur un substrat en silicium (Si) dont les dimensions peuvent être au maximum de 1m x 0.15m.

## 1.3 État de l'art sur les multicouches

### 1.3.1 Challenge de fabrication

Malgré les performances des techniques de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron, obtenir des structures en couches parfaites pour les multicouches X reste un projet ambitieux.

En effet, une multicouche idéale est dite 'parfaite' si les interfaces entre chaque couche sont abruptes et suivent la forme désirée (exemple d'une multicouche elliptique parfaite, la forme des interfaces suit parfaitement la forme théorique d'une ellipse).

A l'interface entre les matériaux de deux couches successives, il est important d'éviter le mélange de ces matériaux.



FIGURE 1.5 – Machine de dépôt du laboratoire de fabrication de multicouche à l'ESRF avec quatre cathodes contenant quatre différents matériaux.

### Inter-diffusion chimique

L'interdiffusion (figure (1.6.a)) est un phénomène de migration irréversible des espèces chimiques (atomes, ions ou molécules), qui tend à rendre uniforme le potentiel chimique de chacune des espèces chimiques présentes dans le milieu (que celle-ci soit liquide, gazeux, solide, sous forme cristalline ou amorphe). Dans le cas d'une interface entre deux couches composées de matériaux différents, les matériaux peuvent se mélanger naturellement et 'homogénéiser' la composition chimique du milieu au niveau de l'interface (figure (1.6.a)) (sans présence nécessaire de gradient de pression ou de température).

L'interdiffusion chimique dépend entre autres de la stabilité chimique des matériaux utilisés, de leur solubilité, de la présence de composés intermédiaires, et aussi des caractéristiques de dépôt.

La conséquence pour un miroir multicouche est l'apparition d'un gradient entre des couches ayant des épaisseurs de l'ordre de quelques nanomètres. La fonction de susceptibilité électromagnétique de cette structure périodique en fonction de la profondeur n'est pas une fonction de type créneau (cas idéal) mais une fonction sinusoïdale.

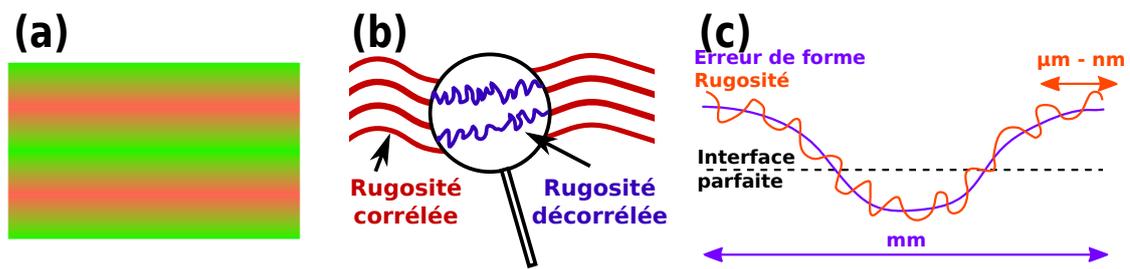


FIGURE 1.6 – (a) est une illustration de l'inter-diffusion aux interfaces entre les matériaux des bicouches. (b) La rugosité est composée d'une rugosité corrélée (rouge) où les interfaces sont localement parallèles et d'une rugosité décorrélée (bleu) où les interfaces ne sont plus parallèles. (c) Schéma d'une interface entre deux couches. Une interface imparfaite peut présenter des composantes que l'on appelle erreur de forme en violet et rugosité en orange. A l'interface la période des défauts de pente est de l'ordre du millimètre, la rugosité a une période de défaut inférieure au micromètre. L'état de l'art pour l'amplitude des défauts de hauteur à la surface de la multicouche est de l'ordre de la centaine de nanomètres en écart maximal (Peak-to-Valley, noté PV) et de l'ordre du nanomètre en moyenne quadratique (Root Mean Square, noté rms).

La performance de réflexion d'un miroir multicouche diminue lorsque la largeur d'interdiffusion (largeur du gradient) augmente. L'interdiffusion peut conduire à l'apparition d'un nouvel élément. Alors la couche d'interdiffusion peut modifier la période de la structure multicouche. L'interdiffusion dans les bicouches *Mo/Si* est bien connue pour provoquer une contraction de la période [32].

### Croissance de couche fine : épaisseur uniforme

Une multicouche parfaite doit avoir les interfaces entre les couches (donc les épaisseurs de couches) qui respectent la géométrie théorique idéale (interfaces parallèles pour une multicouche plate : épaisseur de couche constante et uniforme). Il est donc important de maîtriser l'épaisseur du dépôt et son uniformité sur des surfaces de plusieurs dizaines de centimètres de côté. Or, avoir cette uniformité des épaisseurs de couche sur une grande surface est complexe, à l'échelle du nanomètre.

La loi de Bragg implique des épaisseurs des bicouches de l'ordre du nanomètre pour un miroir multicouche où les longueurs d'onde des rayons X sont  $\sim 0.1\text{nm}$  et où les angles rasants de réflexion sont de l'ordre de  $10^{-2}$  radians. Le processus interférentiel de diffraction de Bragg dans la structure multicouche traduit une sensibilité à des variations d'épaisseur de

l'ordre du dixième de l'épaisseur d'une bicouche (c'est-à-dire inférieures au nanomètre dans le cas des rayons X).

La croissance des couches pose aussi des problèmes d'adhérence au substrat et entre les couches. Il est nécessaire d'adapter le procédé de dépôt pour tenir compte des différentes structures qui peuvent apparaître dans la couche comme le montre la figure (1.7).

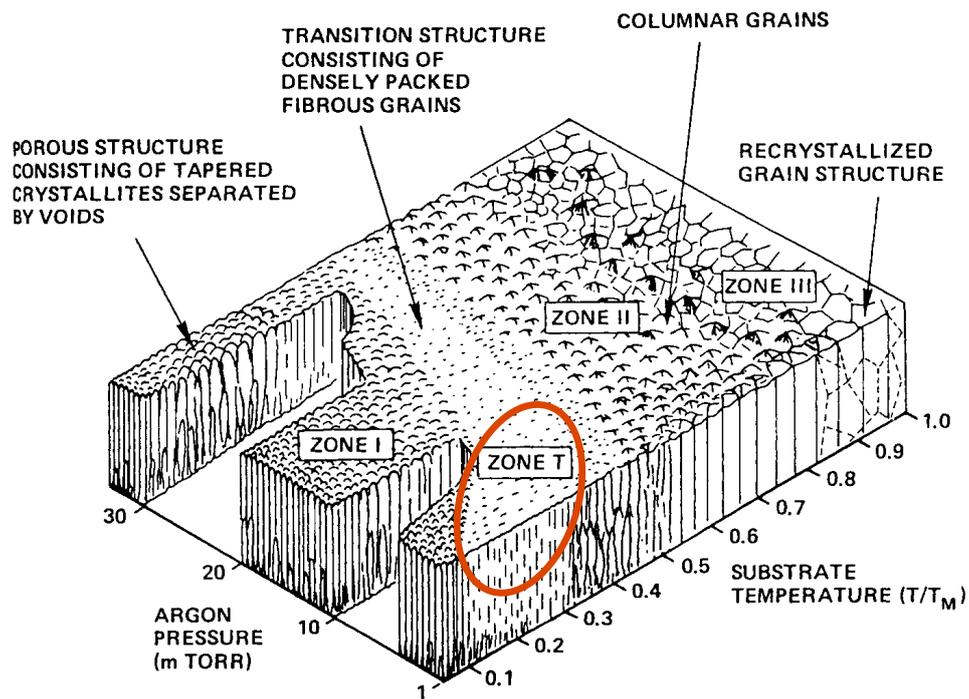


FIGURE 1.7 – Modèle de croissance par pulvérisation selon J.A. Thornton [33]. Pour la fabrication de miroirs multicouches, les matériaux amorphes sont préférables, ainsi qu'une faible pression dans la chambre de pulvérisation et une faible température de substrat. La structure idéale pour les miroirs multicouches est la zone définie par l'ellipse orange.

### Défaut d'interface : rugosité

La figure (1.7) montre des structures qui se forment à la surface du dépôt. Ces structures de dimensions inférieures au nanomètre forment des défauts de rugosité aux interfaces des couches. Les défauts d'interface représentés sur la figure (1.6.c) peuvent être composés de plusieurs

fréquences spatiales. Les effets dans un miroir multicouche sont différents selon le domaine fréquentiel des défauts.

#### Défauts de basse fréquence :

Ces défauts sont aussi appelés erreurs de forme et ont une fréquence spatiale inférieure à  $1 \text{ mm}^{-1}$  (soit une période supérieure à  $1 \text{ mm}$ ).

Ils sont responsables des défauts d'image, et peuvent par exemple être créés par une mauvaise uniformité des épaisseurs de couche.

#### Défauts de moyenne et haute fréquences :

On appelle rugosité les défauts avec une fréquence spatiale supérieure à  $1 \mu\text{m}^{-1}$  pour les moyennes fréquences et supérieure à  $1 \text{ nm}^{-1}$  pour les hautes fréquences. La rugosité provoque de la diffusion dans la structure multicouche et dans le faisceau réfléchi. La réflectivité moyenne du miroir est réduite et la rugosité produit un effet de floutage d'image (exemple : halo de diffusion autour d'une tache focale).

Dans une structure multicouche, il existe différents modes possibles de réplique des couches (1.6.b). Si la multicouche est fine, la reproduction périodique des bicouches peut transmettre un défaut du substrat à travers toute la structure multicouche à l'image d'une couche de neige qui recouvre un paysage. Si la couche de neige est fine, les aspérités du paysage restent visibles malgré la neige. Si la couche de neige est importante, alors les aspérités les plus petites du paysage sont comblées et donc masquées. Dans le cas de défauts reproduits par chaque couche et transmis dans toute la structure multicouche, les défauts sont dits corrélés et les interfaces entre les couches sont localement parallèles. Les autres défauts sont par opposition dits décorrés.

### **Stabilité thermique et temporelle**

Une multicouche illuminée par un faisceau incident subit une contrainte thermique qui peut la dégrader (en particulier si le faisceau incident n'est pas filtré : faisceau blanc). L'échauffement de la multicouche est lié à l'absorption des rayons. La rugosité augmente la diffusion des photons X et augmente l'absorption (donc indirectement l'échauffement de la multicouche). C'est, en particulier, le cas pour le premier miroir multicouche, présent dans un monochromateur multicouche illuminé par un faisceau blanc. Une charge thermique importante peut provoquer un décollement

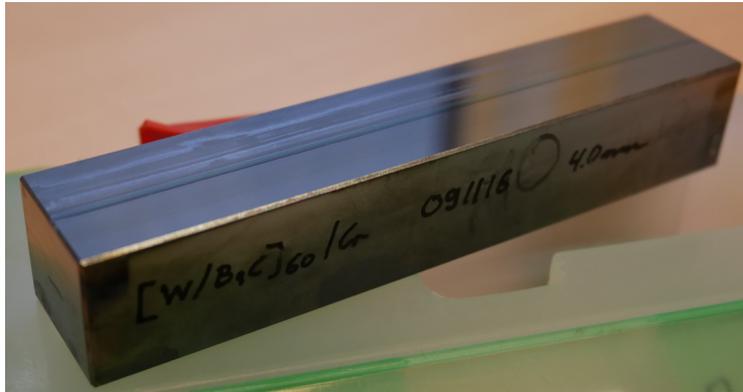


FIGURE 1.8 – Photo de traces d'illumination par un faisceau "blanc" sur un miroir multicouche.

de couche dû aux contraintes excessives entre les couches (voire une ablation pure et simple du dépôt si le faisceau est très puissant). Un faisceau blanc (ou même monochromatique intense) peut aussi provoquer une dégradation des interfaces entre les couches comme le montre la photo figure (1.8) (en particulier si l'atmosphère environnant le miroir contient de l'air ou des gaz réactifs). Des études montrent que des températures de plus de 300 °C provoquent un recuit des matériaux de la multicouche et dégrade les performances de réflectivité [34, 35, 36, 37]. La stabilité thermique des miroirs pour les monochromateurs multicouches de rayons X est donc un enjeu important, bien qu'elle ne semble pas contribuer à la production de lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi.

La structure multicouche, peut aussi évoluer dans le temps dû à l'environnement [38], ce qui implique de choisir les matériaux qui composent la multicouche en fonction du milieu ambiant (air, gaz, niveau de vide).

### 1.3.2 Méthode de caractérisation

#### Méthode par rayons X

##### Réflectivité spéculaire des rayons X

La réflectivité spéculaire aux petits angles est une technique qui permet, à partir de la courbe de réflectivité, de retrouver le profil de densité d'un objet. Cette technique de caractérisation s'applique à des monocouches minces d'environ un micromètre d'épaisseur [40, 41] et à des structures multicouches [42, 43]. Elle permet de déduire avec précision les épaisseurs de couches ainsi que les rugosités aux interfaces.

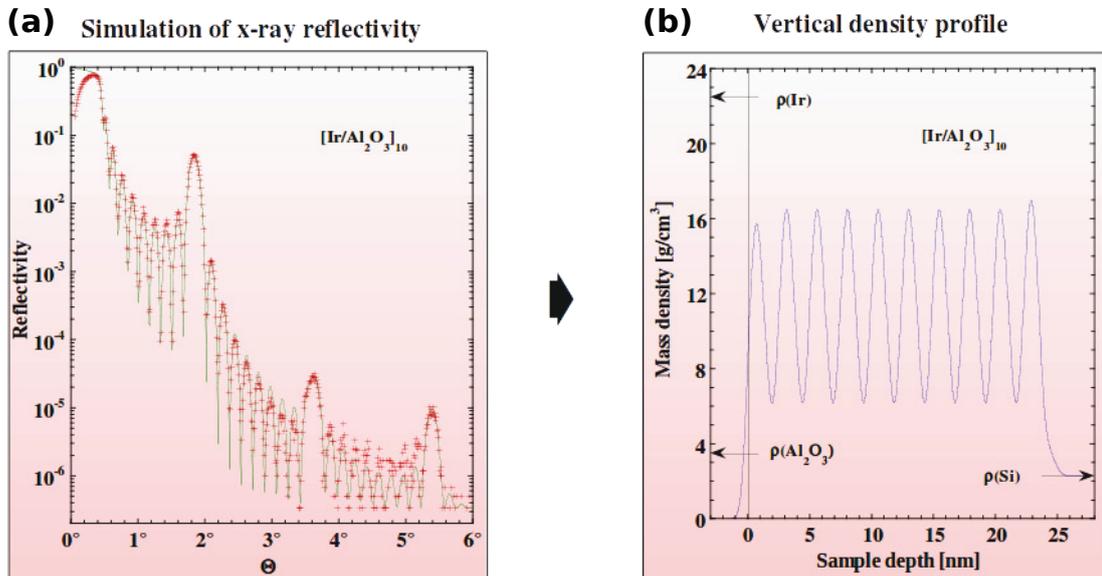


FIGURE 1.9 – Exemple de caractérisation par réflectivité spéculaire extraite de la présentation de Ch. Morawe [39]. (a) Courbe de réflectivité mesurée pour une multicouche  $[\text{Ir}/\text{Al}_2\text{O}_3]_{10}$  et ajustée par simulation. (b) Résultat de reconstruction du profil de densité de la structure multicouche, obtenu à partir de l'ajustement numérique de la courbe de réflectivité expérimentale (a).

Le principe consiste en la mesure de la réflectivité spéculaire de la monocouche ou de la multicouche (figure (1.9.a), [39]). L'épaisseur des couches ( $d$ ) peut être estimée simplement à partir de l'espacement angulaire ( $\delta\theta$ ) entre les pics de Bragg avec la relation  $\delta\theta = \lambda/2d$ . Cette estimation ne prend pas en considération l'indice de réfraction des matériaux, mais reste bonne pour des angles de réflexion supérieurs à deux fois l'angle critique. La méthode de reconstruction par simulation de la réflectivité et de l'ajustement à la courbe expérimentale est plus efficace, pour interpréter pleinement une courbe de réflectivité, tout en considérant les indices de réfraction des matériaux. Le développement mathématique complet des solutions aux équations de propagation de Fresnel dans la multicouche et son implémentation sont détaillés dans [44, 45, 46]. Cette méthode par simulation permet alors de reconstruire le profil de densité de la structure multicouche comme illustré sur la figure (1.9.b).

Il faut cependant préciser que les paramètres de rugosité et d'épaisseur de couche sont des valeurs moyennes sur le volume illuminé durant la mesure de réflectivité.

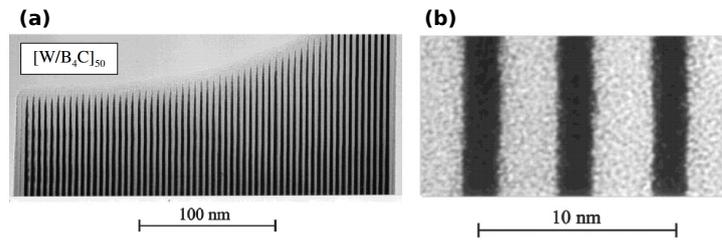


FIGURE 1.10 – Exemple de caractérisation d'une multicouche par microscopie électronique en transmission extraite de la présentation de Ch. Morawe [39]. (a) Image d'une multicouche  $[W/B_4C]_{50}$ . (b) Agrandissement d'une zone de l'image (a).

### Diffusion élastique des rayons X

Cette technique est basée sur la diffusion élastique des rayons X par les électrons de l'échantillon. Elle permet d'obtenir la forme, la taille, la distribution et l'orientation des objets. Des techniques plus spécifiques comme la diffusion des rayons X aux petits angles (SAXS en anglais) ou la diffusion à angle d'incidence rasant des rayons X aux petits angles (GISAXS en anglais), sont applicables aux multicouches [32, 47]. Elles permettent l'étude des propriétés structurales pour des échelles de un à une centaine de nanomètres, la méthode GISAXS étant adaptée aux couches minces. Il est aussi possible d'étudier la corrélation des structures et de séparer les effets induits par la rugosité, de ceux induits pas la diffusion aux interfaces. Le principe consiste à illuminer l'échantillon d'un faisceau monochromatique incident de vecteur d'onde  $k_i$ . L'intensité diffusée est distribuée selon l'angle de diffusion  $\theta_d$ , le caractère élastique de la diffusion permet de décrire le vecteur d'onde diffusé  $k_h$  tel que  $|k_i| = |k_h|$  et le vecteur de diffusion  $\vec{h} = |k_i - k_h|$  défini par  $|\vec{h}| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta_d/2)$ . L'intensité d'une solution d'objet (ie des structures) est alors  $I(\vec{h}) = \Delta\rho^2 \Phi_V V_P P(\vec{h}) S(\vec{h})$ , avec  $\Delta\rho^2$  le contraste,  $\Phi_V$  la fraction volumique de l'objet,  $V_P$  le volume d'un objet seul,  $P(\vec{h})$  le facteur de forme de l'objet et  $S(\vec{h})$  le facteur de structure décrivant les corrélations entre les objets.

### **Autres méthodes**

#### Microscopie électronique par transmission

La microscopie électronique permet d'avoir accès à la micro-nano-structure et à la morphologie des couches minces (figure (1.10)). Elle permet aussi d'observer les erreurs de fabrication, l'évolution de la rugosité, la cristal-

linité ou l'inter-diffusion aux interfaces. Elle peut donc compléter les caractérisations par rayons X. Cependant, il s'agit d'une méthode destructive.

#### Métrologie de Surface

Les méthodes de mesure de surface peuvent aussi être appliquées à l'étude des multicouches bien qu'elles ne permettent pas de caractériser la structure multicouche dans son volume et donc chacune des couches qui la constituent. Elles peuvent être utiles à l'étude des surfaces durant la fabrication des multicouches. En effet, il est utile de connaître la qualité du substrat sur lequel la multicouche est déposée car celui-ci peut influencer la structure multicouche déposée. Ces méthodes permettent de comparer la surface supérieure de la multicouche avec celle du substrat pour observer les évolutions avec le dépôt des couches. L'avantage de ces techniques est leur accessibilité, car elles sont courantes dans les laboratoires et ne nécessitent pas l'usage d'une source de rayonnement X type synchrotron. Parmi ces techniques on peut citer la microscopie à force atomique [48], l'interférométrie [49] et l'utilisation de profilomètres.

A l'ESRF, les caractérisations de surface sont généralement effectuées avec un interféromètre de Fizeau et un profilomètre.

### **1.3.3 Motivation d'étude des lignes d'intensité des multicouches**

#### **Problématique des multicouches à l'ESRF**

Le développement des techniques de micro-imagerie dans les synchrotrons a commencé vers la fin des années 80 [50, 51, 52]. L'avènement des synchrotrons de troisième génération conduit à des capacités de mesure d'imagerie de haute résolution [53, 54, 55, 56, 57, 58]. Les performances de micro-imagerie dépendent fortement des performances de cohérence et du flux de photons X avec un faisceau monochromatique. Un flux de photons important est avantageux pour plusieurs raisons. La première est le temps d'exposition nécessaire pour une image. Ainsi, des mesures comme la micro-tomographie peuvent exiger plus de mille images. Or, l'échauffement de l'échantillon (par absorption des rayons X) ou des événements extérieurs peuvent perturber la mesure. Une autre raison est la détection des contrastes de densité de matière qui dépendent aussi du flux de photons [59, 60].

Dans ce cadre, les miroirs multicouches peuvent être dimensionnés pour une utilisation spécifique ; la période et donc la longueur d'onde des pho-

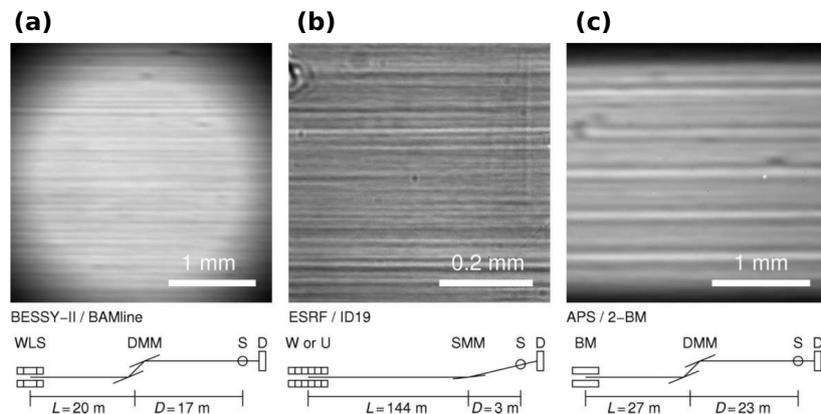


FIGURE 1.11 – Exemple de motif d'intensité produit par la réflexion par une multicouche (conditions du premier pic de Bragg) selon différents matériaux, périodes, nombres de couche et lignes de lumière [49]. Les schémas des configurations expérimentales sont donnés en dessous de chaque image. (WLS : wavelength shifter ; W : wiggler ; U : undulator ; BM : bending magnet), monochromateur (DMM : double multilayer monochromator ; SMM : single multilayer monochromator), et les distances entre la source et la multicouche : L et D entre la multicouche et la cabine expérimentale (S : sample ; D : detector).

tons peuvent être ajustées, tout comme la bande passante  $\Delta E/E$  qui permet un flux de photons typiquement cent fois plus important lorsque l'on utilise un miroir multicouche par rapport à un cristal. Les géométries courbes sont plus faciles à réaliser. Des optiques plus complexes comme les lentilles multicouches de Laue [61] sont aussi possibles.

Malgré ces avantages en comparaison avec les optiques à cristaux, les propriétés du faisceau réfléchi sont dégradées. L'effet négatif le plus important de la réflexion par un miroir multicouche pour la micro-imagerie (et l'imagerie d'une manière générale) est l'apparition de motifs d'intensité irréguliers en forme de lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi (illustré figure (1.11)). Ces motifs d'intensité et leurs effets compliquent l'exploitation des données et ne peuvent pas être totalement supprimés par les corrections de 'champ plat' [62].

De plus, il a été observé que la cohérence du faisceau réfléchi est dégradée par le miroir multicouche [63, 64, 65, 66]. En conséquence, les techniques d'imagerie sensibles à la phase voient leur contraste diminuer.

En conclusion, les problématiques créées par la dégradation du faisceau avec les miroirs multicouches, doivent être résolues pour les applications telles que la micro-imagerie où ces miroirs sont nécessaires pour fournir un

flux de photons important. C'est pourquoi des études sur les matériaux, les paramétrages (période, nombre de couches) ont été effectuées.

### Études des lignes d'intensité et de cohérence

Les premières études sur les lignes d'intensité produites dans le faisceau réfléchi des miroirs multicouches ont consisté à comparer différentes multicouches. Les multicouches  $W/Si$ ,  $Mo/Si$ ,  $Pd/B_4C$  avec des périodes comprises entre  $2.5\text{ nm}$  et  $5.5\text{ nm}$  ont été caractérisées. L'étude des rugosités de ces multicouches (surface et structure multicouche) [67] et des réflectivités et des contrastes observés en fonction de la cohérence du faisceau réfléchi [68], conduisent à affirmer que la composition des multicouches est le facteur dominant à étudier pour espérer réaliser des miroirs multicouches capables de générer un faisceau homogène qui préserverait la cohérence de la source [49, 69]. Par ailleurs, d'autres études [70, 63, 71] montrent que le nombre de couches et l'épaisseur des bicouches n'ont pas ou ont peu d'influence. Ces constatations sont partiellement vérifiées dans [63]. La faible influence du nombre de couches et de la période de l'empilement est confirmée ; les différentes compositions de structure multicouche montrent finalement peu de différences. Ainsi, une étude plus complète sur les influences des paramètres de dépôt des couches et dans différents laboratoires de fabrication de multicouche est proposée.

Une collaboration entre les laboratoires de multicouches de l'Advanced Photon Source (APS), de l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) et du National Synchrotron Light Source II (NSLS) a conduit à étudier des multicouches  $W/B_4C$ , produites dans les différents laboratoires [64, 65]. Les résultats montrent que, malgré des machines de dépôt différentes (mais utilisant la même technique de dépôt), les multicouches fabriquées ont des performances de réflectivité et des motifs d'intensité équivalents. Les motifs d'intensité des faisceaux réfléchis semblent indépendants de la méthode de fabrication. Le substrat pourrait être à l'origine des inhomogénéités des faisceaux réfléchis. En effet, il peut influencer la structure multicouche déposée dessus [71]. Il a aussi été observé qu'une partie des motifs de défaut de hauteur à la surface du substrat est identique à ceux de la surface de la multicouche [63]. Les formes et la rugosité du substrat sont alors reproduits partout dans la structure multicouche.

Des défauts de hauteur à la surface du miroir peuvent induire des perturbations de phase [72]. Ces perturbations de phase transforment l'intensité car elles sont liées aux effets de propagation des ondes réfléchies [54]. Cela est confirmé pour des surfaces réfléchissantes [73, 74].

Ainsi, la qualité de surface du substrat influence fortement la formation de motifs d'intensité en forme de ligne d'intensité, dans le faisceau réfléchi par un miroir multicouche [66]. Pour autant, plusieurs questions ne sont pas résolues. La première est l'identification des défauts de hauteur à la surface du substrat, responsables des motifs d'intensité. Une approche simpliste consisterait à considérer la présence de rayures sur le substrat dues, par exemple, aux techniques de polissage du substrat. Ces défauts de hauteur seraient alors à l'origine de la forme géométrique des lignes d'intensité. Cependant, la métrologie de surface ne montre pas ce type de défaut. De plus, les techniques de polissage appliquées s'attachent à éviter toute trace de polissage en mettant en œuvre des polissages par rotation aléatoire.

L'étude des effets induits par des défauts de hauteur dans la structure multicouche doit être réalisée pour comprendre ces perturbations de phase ainsi que les dégradations de cohérence observées.

Un projet de modélisation numérique a été proposé. Ce projet de thèse a pour objectif de produire un modèle numérique de multicouche permettant de simuler la production des lignes d'intensité.

### **Modélisation numérique des multicouches**

La modélisation de modèle en couches peut être effectuée par une approche matricielle par la méthode (matricielle) d'Abélès. Cette méthode est largement utilisée en optique ou en acoustique, pour modéliser la propagation d'onde électromagnétique ou sonore, à travers un milieu stratifié [75, 76, 77, 78]. Elle permet de prendre en considération des déformations ou des défauts dans les couches, selon la profondeur de l'empilement [79, 80, 81]. D'autres modèles comme la "DWBA" (Distorted Wave Born Approximation) [82, 83] ou des méthodes hybrides de propagation et de tracé de rayons [84], sont employées pour des simulations de miroirs multicouches. En revanche elles ne permettent pas de considérer les déformations dans les couches, selon les directions parallèles à la surface du dépôt.

### **Choix du système d'équations de Takagi-Taupin**

Le modèle théorique utilisé dans ce travail de thèse pour modéliser les miroirs multicouches est le système d'équations de Takagi-Taupin. Ce système d'équations différentielles a des solutions analytiques, pour des cas simples comme le cas d'une multicouche parfaite. Ces équations de Takagi-Taupin peuvent aussi se résoudre numériquement, pour des cas

quelconques.

Les équations de Takagi-Taupin sont issues de la théorie dynamique, qui est plus précise que les théories cinématiques ou de lancer de rayons. De plus, les équations de Takagi-Taupin sont largement utilisées pour modéliser les cristaux avec des déformations importantes [85]. Les équations de Takagi-Taupin sont une des seules théories qui permettent de considérer des déformations quelconques, dans toutes les directions et en particulier dans les directions parallèles à la surface de la multicouche.

Une analogie est possible, entre les plans atomiques des cristaux et les interfaces des multicouches, car elle ont en commun la loi de Bragg (la loi de Bragg doit être modifiée pour les multicouches, voir chapitre 4, l'équation 4.8). De ce fait, l'utilisation des équations de Takagi-Taupin pour modéliser des multicouches avec un champ de déformation est parfaitement justifiée. Le champ de déformation pourra prendre en compte plusieurs types de défauts, comme les erreurs de hauteur, de pente et de période. Cependant, dans ce travail de thèse, seuls les défauts de hauteur seront étudiés. En effet, nous faisons l'hypothèse qu'ils sont les principaux responsables de la production de lignes d'intensité.

Finalement, le choix a été fait de modifier un modèle existant des équations de Takagi-Taupin qui simulait des multicouches focalisantes pour considérer des multicouches plates avec présence de défauts de hauteur.

## 1.4 Plan du manuscrit de thèse

Bien que l'objectif de ce travail de thèse soit l'élaboration d'un modèle numérique, pour simuler les miroirs multicouches avec des défauts de hauteur. La validation ultime du modèle et des simulations nécessite de mesurer au préalable ces défauts de hauteur. C'est pourquoi un travail supplémentaire expérimental est nécessaire. Il consiste à tenter de trouver les défauts de hauteur (ou d'autres types de défauts) responsables des lignes d'intensité du faisceau réfléchi et de les caractériser.

Ainsi ces deux volets du travail de thèse sont abordés séparément dans les chapitres 2 et 3, pour l'aspect expérimental et les chapitres 4 à 6, pour la modélisation et la simulation.

Cela permet premièrement d'expliquer les nouvelles techniques expérimentales développées pour la caractérisation des défauts des multicouches et deuxièmement d'exposer dans le second chapitre expérimental, les résultats obtenus, dont une partie est utilisée pour des simulations du chapitre 6.

Le chapitre suivant (4) aborde la théorie de Takagi-Taupin et la méthode de résolution numérique. Le chapitre 5 montre les modifications et les modèles complémentaires nécessaires pour reproduire les lignes d'intensité. Les simulations utilisant les différents modèles et leurs résultats seront commentés dans le chapitre 6. Finalement, le chapitre 7 donnera un résumé des résultats et des conclusions des différents travaux effectués. Il permettra de présenter des perspectives futures à ce travail de thèse.

## **Chapitre 2**

# **Techniques de caractérisation de miroir multicouche**



*Structure en couche d'une carapace de tortue*

## 2.1 Introduction

Comme cela a été mentionné dans le chapitre précédent la problématique des lignes d'intensité suppose la présence de défauts qui perturbent l'onde réfléchie et en particulier sa phase. Cependant, ces défauts n'ont été ni caractérisés, ni identifiés expérimentalement. Le défaut de hauteur est supposé être le défaut principal, responsable de la déformation du front d'onde et de la production de lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi. Les déformations du front d'onde de l'ordre de la longueur d'onde  $\lambda \approx 10^{-10} m$  correspondent à des défauts de hauteur, inférieurs au nanomètre. Cela est en particulier lié à l'angle rasant où  $\sin\theta \simeq 10^{-2}$ , car la phase induite sur l'onde réfléchie par un défaut de hauteur  $h$ , sur une surface réfléchissante est  $\varphi = 4\pi h \sin\theta / \lambda$ . Pour observer ces défauts de hauteur, il faut obtenir des topographies des échantillons à l'échelle de la centaine de micromètres et avec une sensibilité de mesure de hauteur inférieure au nanomètre.

Il est donc nécessaire de caractériser les défauts des multicouches, en particulier les écarts de hauteur par rapport à des couches parfaitement plates. Ces écarts sont responsables des perturbations de phase des ondes optiques.

Par ailleurs, un modèle numérique simulant les effets produits par des défauts mesurés expérimentalement, peuvent permettre d'identifier un lien de cause à effet entre les lignes d'intensité et les défauts de surface d'un miroir.

La caractérisation sur ligne de lumière des défauts de multicouche avec les rayons X est nécessaire. En effet, elle permet de s'approcher des conditions expérimentales pour lesquelles des lignes d'intensité sont observées. De plus, les propriétés de cohérence et la longueur d'onde des photons X employées permettent des résolutions spatiales et des sensibilités suffisantes

pour caractériser les défauts responsables des lignes d'intensité. Toutes ces raisons nous ont poussé à utiliser des techniques d'imagerie par diffraction et de reconstruction de phase. L'imagerie par diffraction de Laue est très utilisée pour les caractérisations des défauts dans le volume des cristaux. Les méthodes de reconstruction de phase permettent, elles, d'effectuer des mesures de topographie pour une surface réfléchissante. Les principes de mesure, l'analyse et le type d'informations obtenus sont commentés dans ce chapitre.

## 2.2 Étude des multicouches par interférométrie Fizeau

L'interférométrie est une technique de mesure, où les interférences entre plusieurs ondes cohérentes [78], sont utilisées, pour détecter des variations de la surface étudiée.

Les interférences mesurées résultent des différences de chemin optique entre l'onde réfléchi par la surface, et une distance optique de référence. L'ESRF est équipé d'un interféromètre type Fizeau, de marque ZYGO, installé dans une salle blanche contrôlée thermiquement et avec des moyens d'amortissement des vibrations. Cet instrument a permis de caractériser les miroirs avant et après dépôt et de démontrer une reproduction fidèle des défauts du substrat sur la surface externe de la multicouche [66].

Le rapport de longueur d'onde entre la lumière utilisée par l'interféromètre ( $633\text{ nm}$ ) et celle de notre faisceau de rayons X à  $15\text{ keV}$  ( $0.0826\text{ nm}$ ) est de l'ordre de 7600 .

La réflexion est en incidence normale lors des mesures d'interférométrie, alors qu'avec les rayons X, les angles sont rasants (car beaucoup plus pénétrants).

Il en résulte que l'empreinte des défauts dans le faisceau réfléchi est très différente en raison de l'angle rasant, car elle est réduite d'environ un facteur cent.

De plus, la mesure d'interférométrie donne une information de surface, alors que les miroirs multicouches réfléchissent les rayons X, grâce à la diffraction dans leur volume.

Ces différences justifient aussi de caractériser directement (les défauts à l'origine des lignes d'intensité), avec les techniques de rayons X .

## 2.3 Caractérisation des multicouches par imagerie X en diffraction de Bragg

### "Tâche de diffraction"

Les directions de diffraction possibles, par un cristal infiniment épais sont données par la transformée de Fourier du réseau de Bravais, de ce cristal.

C'est ce qui constitue le réseau réciproque du cristal. Une onde plane incidente dont la direction de propagation est  $\vec{k}_0$ , produira une onde diffractée de vecteur d'onde  $\vec{k}_h$ , si et seulement si, le vecteur diffraction  $\vec{h} = \vec{k}_h - \vec{k}_0$  est un vecteur du réseau réciproque.

La théorie prévoit autour de cette position, une "largeur intrinsèque de diffraction" de l'ordre du microradian pour les cristaux parfaits et infiniment épais .

Cela est rigoureusement vrai seulement si, le cristal diffractant est suffisamment épais, c'est-à-dire de dimension supérieure à un millier de longueurs d'onde.

Dans le cas contraire, les taches de diffraction s'élargissent. Ce phénomène est celui décrit par la formule de Scherrer, où  $\lambda$  est la longueur d'onde,  $\varepsilon$  la largeur angulaire du pic,  $\theta_B$  l'angle de Bragg et  $L$  la distance de parcours du faisceau incident, au travers de l'objet diffractant [86].

$$\varepsilon = \frac{\lambda}{L \cdot \cos\theta_B}$$

En conséquence, un faisceau incident peut être diffracté sur une gamme angulaire qui augmente quand le volume diffractant diminue.

Des courbes de réflectivité angulaire peuvent alors être mesurées. Trois paramètres permettent de caractériser, les courbes de réflectivité, l'intensité intégrée  $I_{int}$ , l'angle de réflexion central  $\theta_B$  (ou angle du pic de Bragg) et la largeur à mi-hauteur (*FWHM*) de la courbe.

Dans les paragraphes suivants, les courbes de "Rocking" ("Rocking Curve") et courbes de réflectivité  $\theta/2\theta$  (ou courbe de réflectivité spéculaire) sont utilisées, pour caractériser des défauts. Pour cela nous comparons principalement les angles de pic de Bragg  $\theta_B$ .

### 2.3.1 "Rocking Curve Imaging"

La technique de mesure, connue sous le nom de "Rocking Curve Imaging" (RCI), est une technique d'imagerie (utilisant les propriétés de la diffraction de Bragg), destinée à étudier la qualité des monocristaux (croissance, dislocation ...).

Elle est la version "quantitative" de la topographie aux rayons X utilisée depuis la fin des années 1950 pour l'étude de défauts dans les cristaux, en particulier ceux produits pour la micro-électronique.

Avec l'amélioration des sources synchrotrons et l'utilisation des détecteurs bidimensionnels, il est désormais possible de générer des cartographies. Celles-ci permettent une reconstruction numérique de la distribution des défauts dans les échantillons.

En effet, une caméra bidimensionnelle permet l'analyse, pixel par pixel de l'information enregistrée, pour en déduire la distribution spatiale de distorsion locale de la maille.

La mesure peut être effectuée en mode réflexion (Bragg) ou transmission (Laue). Les développements apportés à la technique de RCI sont rassemblés dans les références suivantes : [87, 88, 89, 90, 91, 92].

A l'ESRF, les mesures de topographie par RCI, pour la caractérisation des cristaux sont effectuées sur la ligne de lumière BM05.

La RCI est une technique habituellement appliquée aux cristaux et généralement avec la géométrie de Laue.

Ici nous avons non seulement appliqué pour la première fois cette technique sur un miroir multicouche, mais aussi dans un autre mode de diffraction, la diffraction de Bragg.

Le principe de mesure et l'analyse des données sont présentés dans les paragraphes suivants.

#### Principe de mesure des "Rocking Curves" locales

Comme illustré sur la figure (2.1.a), le faisceau est monochromatique et fixe. Le détecteur immobile mesure l'intensité du faisceau diffracté. Une série d'images du faisceau diffracté, enregistrées à différents angles de rotation (figure (2.1.b)), permet de mesurer une courbe de réflectivité qui est appelée "Rocking Curve". Une fois la courbe de "Rocking" obtenue, les trois paramètres  $I_{int}$ ,  $\theta_B$ ,  $FWHM$  peuvent être déterminés.

La figure (2.2) montre que la rotation de la multicouche et le détecteur fixe, font une mesure de la courbe de réflectivité, en balayant l'espace de

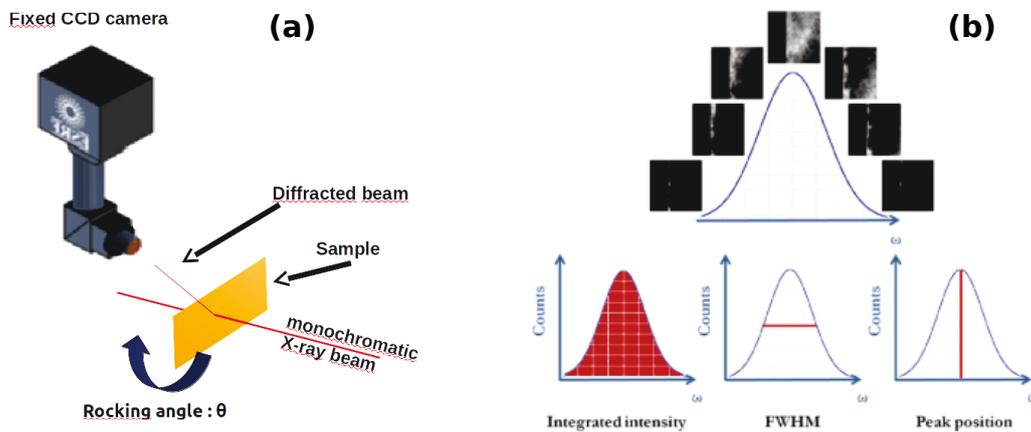


FIGURE 2.1 – (a) Principe de mesure de la courbe de Rocking, la source est monochromatique et fixe, le détecteur immobile mesure l'intensité du faisceau diffracté pour différents angles de rotation de l'échantillon. (b) Trois paramètres importants peuvent être extraits des courbes mesurées, l'intensité intégrée  $I_{int}$ , l'angle de réflexion central  $\theta_B$  et la largeur à mi-hauteur FWHM.

Fourier horizontalement (sur un arc de cercle mais pour une petite gamme angulaire).

L'utilisation d'une caméra multi pixels permet d'extraire des données à chaque pixel. Pour un cristal de bonne qualité (mosaïcité  $\approx$  quelques  $\mu rad$ ), les données d'un pixel, correspondent à une "Rocking Curve" locale de l'échantillon.

La comparaison entre chaque pixel des paramètres des courbes de Rocking permet alors de reconstruire, les distorsions de l'échantillon. En effet, les variations de la largeur à mi-hauteur, de l'intensité intégrée et de la position du pic de Bragg (PPB) traduisent une inhomogénéité cristalline de l'échantillon.

Dans le cas des multicouches, nous nous intéresserons seulement aux différences de PPB, ce afin de reconstruire les erreurs de pente de la structure multicouche. Finalement, la figure (2.3) illustre le principe de la mesure de RCI, laquelle permet de mesurer, dans l'espace réciproque les écarts de PPB dans la direction horizontale.

### Interprétation des variations de PPB des "Rocking Curves"

La figure (2.3) montre qu'une désorientation de la structure multicouche, induit un déplacement de la tâche de diffraction.

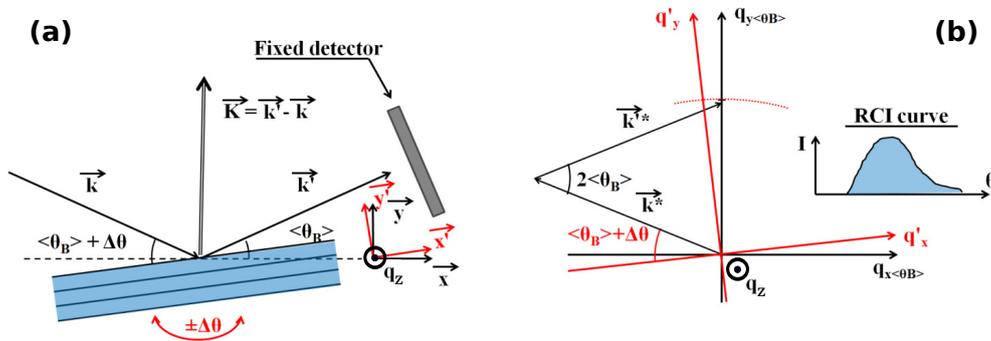


FIGURE 2.2 – (a) La source et le détecteur sont immobiles, le vecteur de diffraction  $k$  reste inchangé. La rotation de l'échantillon d'angle  $\theta$  change la base qui représente l'échantillon par un changement des vecteurs de base  $(x', y')$ . (b) Dans l'espace de phase, le vecteur de diffraction réciproque  $k^*$ , illustre la configuration de la mesure. La rotation de l'échantillon revient à effectuer une rotation autour de l'axe  $q_z$ , dans l'espace réciproque. Ainsi, la tache de diffraction est immobile dans la base  $(q'_x, q'_y)$ , et se déplace sur l'arc de cercle, en rouge dans la base  $(q_x, q_y)$ .

Si la structure multicouche a pour seule différence, une erreur d'orientation de la structure multicouche  $\delta\theta$ , alors le déplacement angulaire de la PPB mesuré  $\Delta\theta$  et  $\delta\theta$ , sont égaux. Les positions des pics de Bragg, permettent d'obtenir la topographie de hauteur de la structure périodique diffractante, par l'intégration des pentes locales, mesurées par la RCI.

#### Résolution angulaire de la mesure

La résolution angulaire des mesures d'erreur d'inclinaison est directement fixée par la résolution angulaire de l'axe de rotation supportant le miroir. Le diffractomètre dont nous disposons, permet une résolution de  $0.175 \mu\text{rad}$ , ce qui est suffisant par rapport aux erreurs de pente attendues pour les multicouches, de l'ordre de  $10 \mu\text{rad}$ .

### 2.3.2 " $\theta/2\theta$ Imaging"

La mesure de diffraction  $\theta/2\theta$  diffère de la mesure RCI, par le fait que le détecteur est mobile et suit le déplacement du faisceau réfléchi. Les mesures RCI et  $\theta/2\theta$  Imaging sont complémentaires, car elles caractérisent les variations de pente des mosaïques, pour la première, et les variations de paramètre de maille pour la seconde.

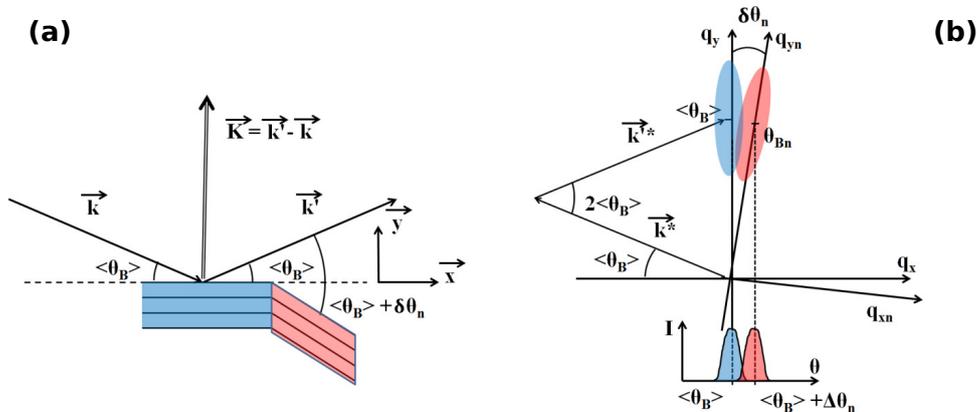


FIGURE 2.3 – (a) L'échantillon est composé de deux zones : l'une en bleu, dans laquelle les plans de diffraction font un angle  $\langle \theta_B \rangle$ , par rapport à l'incidence et l'autre en rouge, où les plans de diffraction ont une erreur de pente d'angle  $\Delta \theta$ , par rapport aux plans bleus. (b) La représentation dans l'espace de phase, montre le comportement des taches de diffraction associées aux différents plans diffractants. L'écart de position du pic de Bragg est produit, par l'écart d'angle entre les plans bleu et rouge.

### Principe de mesure de l'imagerie $\theta/2\theta$

La courbe de diffraction  $\theta/2\theta$  correspond à la mesure d'intensité diffractée, par l'échantillon en géométrie de Bragg, dans la direction définie par l'angle  $2\theta$ , par rapport à la direction d'incidence. Où  $\theta$  est l'angle d'incidence par rapport à la surface.

Le faisceau incident est monochromatique et fixe. L'échantillon tourne d'un angle  $\theta$ , le détecteur suit le déplacement du faisceau diffracté et en mesure l'intensité. Le détecteur effectue une rotation sur un arc de cercle, comme illustré figure (2.4.a).

Une série d'images du faisceau réfléchi, enregistrée à différents angles de rotation par une caméra multi pixels, permet d'obtenir les courbes de diffraction  $\theta/2\theta$ .

Malgré la forme quasi identique des courbes de "Rocking" et  $\theta/2\theta$ , dans la zone d'un pic de Bragg, la différence fondamentale entre ces deux mesures, est la direction d'observation des écarts de position dans l'espace réciproque (figure (2.4.b)).

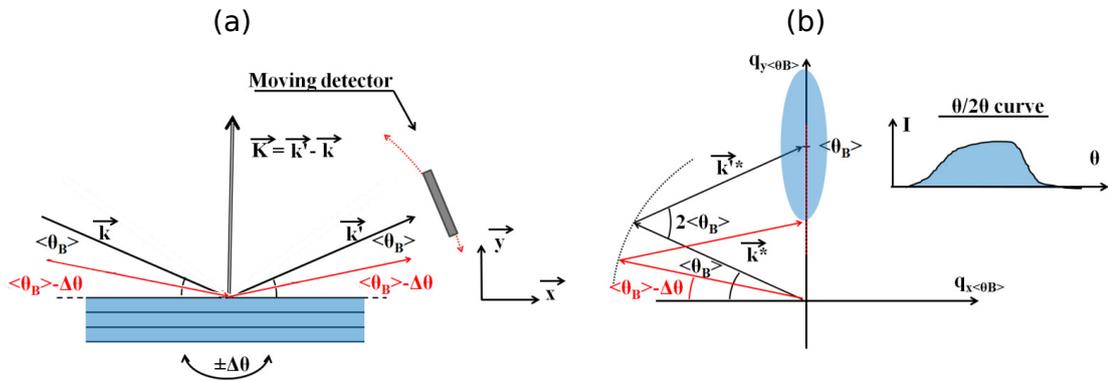


FIGURE 2.4 – (a) La mesure de la réflectivité spéculaire exige de positionner le détecteur dans l'axe du faisceau réfléchi, dont l'angle de réflexion est égal à l'angle d'incidence. Le détecteur se déplace donc sur un arc de cercle, si l'angle d'incidence change. Le vecteur de diffraction  $k$  varie avec les angles d'incidence et de réflexion. (b) Dans l'espace réciproque, le profil de la tache de diffraction coïncide avec l'axe vertical  $q_y$ . En dehors de la zone de réflexion totale, la position des maximums de réflectivité correspond aux angles des différents ordres de Bragg moyens de la multicouche  $\theta_{B1}, \theta_{B2} \dots$

### Interprétation des Courbes de diffraction " $\theta/2\theta$ "

Le paramètre principal utilisé pour l'interprétation des courbes de réflectivité est, là aussi, la position du pic de Bragg (PPB). En effet celui-ci est directement lié à des écarts de période de la structure diffractante, selon la loi de Bragg (figure(2.5)).

Ainsi la dérivation de la loi de Bragg, à une énergie fixée (équation (2.1)) nous permet de définir le lien entre les écarts de PPB mesurés  $\Delta\theta$  et les écarts de période  $\Delta d$ . Où  $d$  est la période de la multicouche.

$$\Delta\theta = (\Delta d/d) \tan \theta_{Bragg} \quad (2.1)$$

Les détecteurs à pixels, utilisés pour mesurer le faisceau diffracté, permettent d'obtenir des courbes de diffraction  $\theta/2\theta$  locales.

#### Sensibilité de la mesure

La sensibilité de la mesure de variation de période  $\Delta d$  est de l'ordre de  $d \cdot 10^{-5}$  (calculé avec l'équation (2.1)), dans le cas où  $\Delta\theta \approx 10^{-7} \text{ rad}$  et  $\tan \theta \approx 10^{-2}$ . Si  $d$  est de l'ordre du nanomètre, alors, la sensibilité sur les écarts de période est proche de la taille d'un noyau atomique ( $1 \text{ fm}, i.e 10^{-15} \text{ m}$ ). La sensibilité de la technique  $\theta/2\theta$  Imaging est donc très grande. Cependant, elle correspond à une période moyenne de la structure dans un voxel, et

ne permet pas de mesurer à l'échelle du noyau atomique.

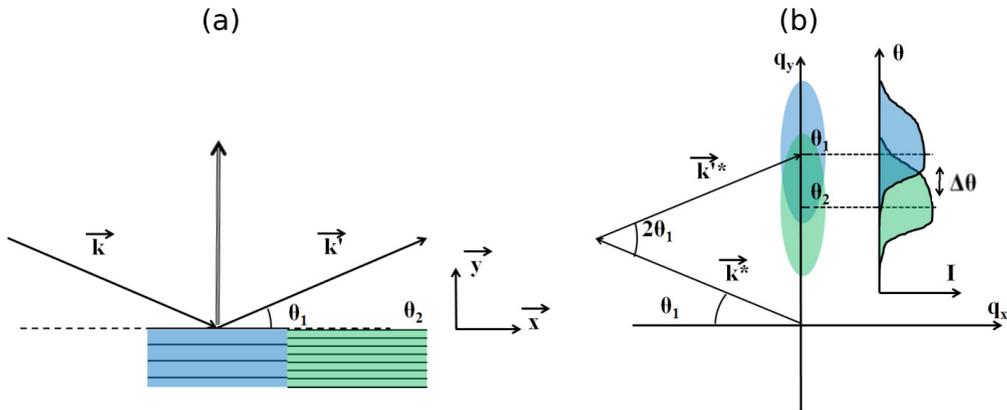


FIGURE 2.5 – (a) Cas d'un échantillon avec deux structures périodiques qui diffèrent par leur période. En vertu de la relation de Bragg, pour une même longueur d'onde, les deux structures ont des angles de Bragg différents. Cela se traduit par un écart de position du maximum de réflectivité des courbes de réflectivité spéculaire, comme illustré en (b).

### Résumé imagerie en diffraction de Bragg RCI et $\theta/2\theta$ Imaging

Comme nous l'avons montré précédemment, les deux techniques utilisées, permettent d'obtenir des informations complémentaires sur la structure d'une multicouche. La RCI permet de reconstruire la topographie de hauteur via les erreurs de pente, qui sont principalement induites par les défauts de hauteur du substrat. La mesure  $\theta/2\theta$  Imaging informe sur la période locale de la structure.

Les cristaux et les miroirs multicouches, exigent un traitement différent des données, en raison de leur différence de largeur de "Rocking Curve". Ce point est détaillé dans le chapitre suivant, mais il est important de distinguer la différence de procédé induite pour la caractérisation de l'échantillon.

## 2.4 Caractérisation par contraste de phase des multicouches

Les rayons X, particulièrement pénétrants, permettent d'observer l'intérieur des objets, alors que leur petite longueur d'onde permet de mesurer

les caractéristiques d'un échantillon à des échelles inférieures au nanomètre. Il y a plus de vingt années, l'arrivée de sources cohérentes favorisa les débuts des méthodes d'imagerie par contraste de phase [93, 94, 95, 96, 54].

Des méthodes sont développées sur les lignes de lumière pour l'étude des optiques de rayons X, comme les caractérisations par contraste de phase [97].

## 2.4.1 Méthode de reconstruction holographique

### Principe de la méthode

La technique d'holographie étudie la diffraction de Fresnel d'une onde transmise, par un objet et son interférence, avec l'onde de référence. Si cet objet modifie seulement et faiblement la phase de l'onde qui le traverse, il est possible de reconstruire l'onde réfléchi à partir de la mesure de l'intensité mesurée à une distance donnée.

Bien que la description théorique qui suit considère un objet unidirectionnel celle-ci peut être facilement étendue au cas à deux dimensions.

L'onde incidente selon la direction  $\vec{e}_z$ , est considérée plane et monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$ . L'objet illuminé est décrit par sa fonction de transmittance  $T(x) = \exp[-\mu(x) + i\varphi(x)]$ , dans le plan de l'objet  $z = 0$ , où  $\mu(x)$  et  $\varphi(x)$  sont des fonctions réelles, représentant les effets d'absorption et de phase.

Il est pratique d'exprimer la transmittance de l'onde qui traverse l'objet sous la forme :  $T(x) = 1 + A(x)$ . L'onde transmise  $\psi_z(x)$  jusqu'au plan parallèle au plan objet, à la distance  $z$ , s'obtient par la propagation de Fresnel de la fonction de transmittance.

$$\begin{aligned}\psi_z(x) &= T(x) \otimes |\lambda z|^{-1/2} \exp\left[i\pi \frac{x^2}{\lambda z}\right] \\ \psi_z(x) &= |\lambda z|^{-1/2} \int \exp\left[i\pi \frac{(\eta-x)^2}{\lambda z}\right] T(\eta) d\eta\end{aligned}\quad (2.2)$$

L'intensité réciproque (ou fonction spectrale de l'intensité) à la distance  $z$ , est calculée avec la relation (2.3). Où  $\nu$  est la fréquence spatiale.

$$\tilde{I}_z(\nu) = \tilde{\psi}_z(\nu) \otimes \tilde{\psi}_z^*(-\nu) \quad (2.3)$$

Alors la formule (2.2) devient

$$\tilde{I}_z(\nu) = \left(\delta(\nu) + \exp[-i\pi\lambda z\nu^2] \tilde{A}(\nu)\right) \otimes \left(\delta(\nu) + \exp[i\pi\lambda z\nu^2] \tilde{A}^*(-\nu)\right) \quad (2.4)$$

Où le delta de Dirac est noté  $\delta$ .  
Le terme non linéaire en  $\tilde{A}(v)$  peut être négligé si  $|A(x)| \ll 1$ , c'est-à-dire pour un objet faible. On obtient alors :

$$\tilde{I}_z(v) = \delta(v) + \exp[-i\pi\lambda z v^2] \tilde{A}(v) + \exp[i\pi\lambda z v^2] \tilde{A}^*(-v) \quad (2.5)$$

et

$$\begin{aligned} \tilde{A}(v) &= -\tilde{\mu}(v) + i\tilde{\varphi}(v) \\ \tilde{A}^*(-v) &= -\tilde{\mu}(-v) - i\tilde{\varphi}(-v) \end{aligned}$$

En remplaçant  $\tilde{A}(v)$  et  $\tilde{A}^*(-v)$  La formule précédente peut s'écrire :

$$I_z(v) = \delta(v) - 2 \cos(\pi\lambda z v^2) \tilde{\mu}(v) + 2 \sin(\pi\lambda z v^2) \tilde{\varphi}(v) \quad (2.6)$$

Pour un objet de phase pure ( $\mu(x) = 0$ ), nous avons seulement :

$$\tilde{I}_z(v) = \delta(v) + 2 \sin(\pi\lambda z v^2) \tilde{\varphi}(v) \quad (2.7)$$

Cette formule simple, à priori valable seulement pour les objets de phase faible, c'est-à-dire telle que  $\varphi(x) \ll 1$ , est aussi valable pour une phase lentement variable [98] telle que

$$|\varphi(x + \lambda z v) - \varphi(x - \lambda z v)| \ll 1 \quad (2.8)$$

Il est possible d'obtenir le même résultat pour des objets de phase 'forte'. Pour cela, avec les équations (2.2) et (2.3), on obtient l'intensité réciproque qui peut s'écrire :

$$\begin{aligned} \tilde{I}_z(v) &= \frac{1}{\lambda z} \int \exp[-2i\pi x v] \iint \exp\left[i\pi \frac{(\eta-x)^2 - (\eta'-x)^2}{\lambda z}\right] T(\eta) T^*(\eta') d\eta d\eta' dx \\ &= \frac{1}{\lambda z} \iint T(\eta) T^*(\eta') \exp\left[i\pi \frac{\eta^2 - \eta'^2}{\lambda z}\right] \int \exp\left[-2i\pi x \left(v + \frac{\eta - \eta'}{\lambda z}\right)\right] dx d\eta d\eta' \\ &= \iint T(\eta) T^*(\eta') \exp\left[i\pi \frac{\eta^2 - \eta'^2}{\lambda z}\right] \delta(\lambda z v - \eta' + \eta) d\eta d\eta' \\ &= \exp[-i\pi\lambda z v^2] \int \exp[-i2\pi\eta v] T(\eta) T^*(\eta + \lambda z v) d\eta \end{aligned} \quad (2.9)$$

En posant la fonction de transmittance de phase pure  $T(x) = \exp[i\varphi(x)]$  et  $\eta = \eta' - \frac{\lambda z v}{2}$  la relation (2.9) devient :

$$\tilde{I}_z(v) = \int \exp[-i2\pi\eta' v] \exp\left[i\varphi(\eta' - \frac{\lambda z v}{2}) - i\varphi(\eta' + \frac{\lambda z v}{2})\right] d\eta' \quad (2.10)$$

si la condition (2.8) est valable, alors

$$\begin{aligned}
\tilde{I}_z(v) &= \int \exp[-i2\pi\eta'v] \left(1 + i\varphi(\eta' - \frac{\lambda zv}{2}) - i\varphi(\eta' + \frac{\lambda zv}{2})\right) d\eta' \\
&= \delta(v) + i\tilde{\varphi}(v) [\exp[-i\pi\lambda zv^2] - \exp[i\pi\lambda zv^2]] \\
&= \delta(v) + 2\sin(\pi\lambda zv^2)\tilde{\varphi}(v)
\end{aligned} \tag{2.11}$$

La solution linéaire (2.11) est donc aussi possible, pour des objets de phase 'forte' mais "lentement variable", pour les couples de fréquence spatiale  $v$  et de distance  $z$ , qui respectent les conditions de validité. La solution a donc les avantages d'une relation linéaire et dépend d'une seule fréquence spatiale  $v$ .

### Reconstruction de l'onde

Dans notre cas d'étude de miroir multicouche, nous considérons que la multicouche est un objet de phase. Ainsi, la reconstruction de l'onde transmise (analogue à l'onde réfléchie par le miroir) suit la relation linéaire (2.7) si les conditions de validité sont respectées.

La phase de l'onde est alors :  $TF^{-1} \left[ \frac{\tilde{I}_z(v) - \delta(v)}{2\sin(\pi\lambda zv^2)} \right]$ .

Cependant, les pôles produits par la fonction sinusoïdale du dénominateur posent problème. Il faut donc choisir la distance  $z$  du plan de mesure de  $\tilde{I}_z$ , de telle manière que les pôles soient évités. C'est pourquoi, il est courant de reconstruire la phase de l'onde à partir de plusieurs distances.

Des comparaisons entre les intensités mesurées et les intensités calculées avec la phase reconstruite peuvent être étudiées par la méthode des moindres carrés [99].

Pour des objets absorbants :

La méthode de reconstruction par holographie ne peut pas s'appliquer aux objets, dont l'absorption est importante. Une approche de reconstruction de phase, mélangeant les transferts de contraste et les équations de transport d'intensité existe [100].

### 2.4.2 Méthode de reconstruction de front d'onde par tavelures en champ proche

Une des méthodes utilisées au cours de cette étude des miroirs multicouches, est la méthode de tavelures en champ proche produite par un

diffuseur [97]. Elle permet une mesure du front d'onde, avec une sensibilité de l'ordre du nanoradian et une résolution spatiale inférieure au millimètre, dans les directions transverses à la propagation des rayons X.

### Production des tavelures et mesures du front d'onde

Les tavelures observées dans un faisceau de rayons X cohérent, sont des interférences optiques, créées par les grains d'un diffuseur (ici une membrane).

Des études [101, 102] montrent que ces tavelures mesurées en champ proche permettent d'évaluer la phase du faisceau de manière déterministe (car les déformations des tavelures résultent seulement de la forme du front d'onde).

La visibilité des tavelures doit être optimisée selon la résolution et la réponse du détecteur.

En champ proche, la taille des tavelures dépend principalement de la taille des grains diffusants. Leur visibilité, en revanche, dépend fortement de la cohérence du faisceau.

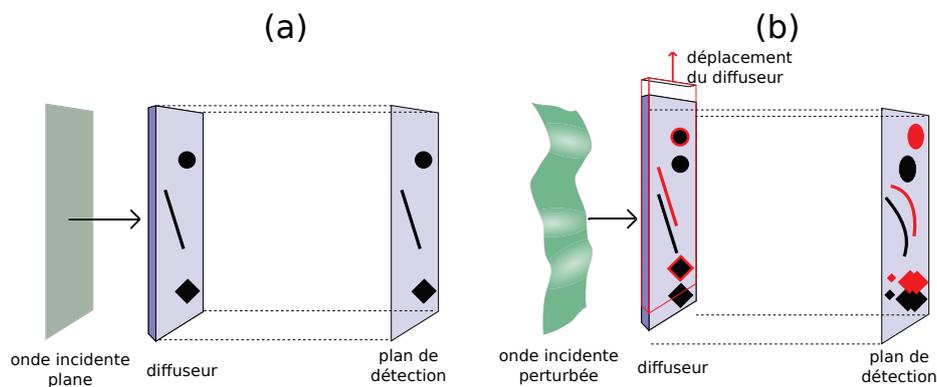


FIGURE 2.6 – (a) Le diffuseur illuminé par une onde plane produit un motif dans le détecteur. (b) l'onde incidente est perturbée, le motif produit par le diffuseur est modifié. Quand le motif est trop déformé, il n'est pas possible d'identifier les objets. Ainsi dans le cas d'une onde fortement perturbée, un déplacement faible du diffuseur est pratiqué, afin de pouvoir utiliser le déplacement du motif (illustré en rouge pour récupérer la phase du faisceau incident).

## Reconstruction du front d'onde et de la surface du miroir

La figure (2.6) illustre le principe de mesure du front d'onde, en comparant la déformation et le déplacement du motif d'intensité généré par un objet inséré dans le faisceau [101].

Cette différence de motif permet d'obtenir une image du front d'onde, déformée par l'utilisation d'algorithmes de corrélation numérique.

Si le motif est trop différent, il n'est pas possible d'identifier les déformations du front d'onde (figure (2.6.b)). Pour parvenir à mesurer les fronts d'onde fortement perturbés, la comparaison des tavelures est faite en utilisant le déplacement des tavelures, lorsque l'on scanne la position du diffuseur. Les différences de motif obtenues, d'une image à l'autre, restent faibles malgré une forte perturbation du front d'onde.

D'un point de vue mathématique, les tavelures sont liées au front d'onde  $W$ , à travers l'équation  $n \frac{dr}{ds} = \text{grad}W$ , où  $\mathbf{r}$  est le vecteur position d'un rayon,  $n$  l'indice optique et la phase  $\varphi = \frac{2\pi}{\lambda}W$  [78].

La courbure locale du front d'onde  $\frac{1}{R_k}$  est calculée dans le plan de détection, positionné à la distance  $z_t$  de l'échantillon, grâce à la relation suivante [97].

$$\frac{1}{R_k} \approx \frac{\partial^2 W(z_t, y)}{\partial y^2} = \frac{1 - \delta\tau/p}{z_t}$$

Où  $\delta\tau$  est le nombre de déplacements du diffuseur nécessaire pour que deux pixels espacés de la distance  $p$ , voient défiler le même motif, avec  $p$  la distance entre deux pixels adjacents du détecteur.

Dans le cas de miroirs fortement courbés, des hypothèses supplémentaires sont nécessaires, pour une caractérisation exacte de la surface réfléchissante, comme décrit avec une méthode itérative dans la référence [103]. En considérant le trajet optique des rayons :

$$y_k^0 = y(P_k), \quad x_k^0 = \frac{y(P_k)}{\tan\Theta}, \quad y(N_k) = Y_k = pk + 2z_t \tan\Theta$$

où  $P_k$  et  $N_k$  sont respectivement, le point de passage du faisceau sur la membrane et le point de détection sur le détecteur après réflexion (comme illustré sur la figure(2.7.a)),  $\Theta$  est l'angle moyen du miroir ( $\Theta = 0$  lorsque le miroir est parallèle au faisceau). L'exposant désigne le numéro d'itération.

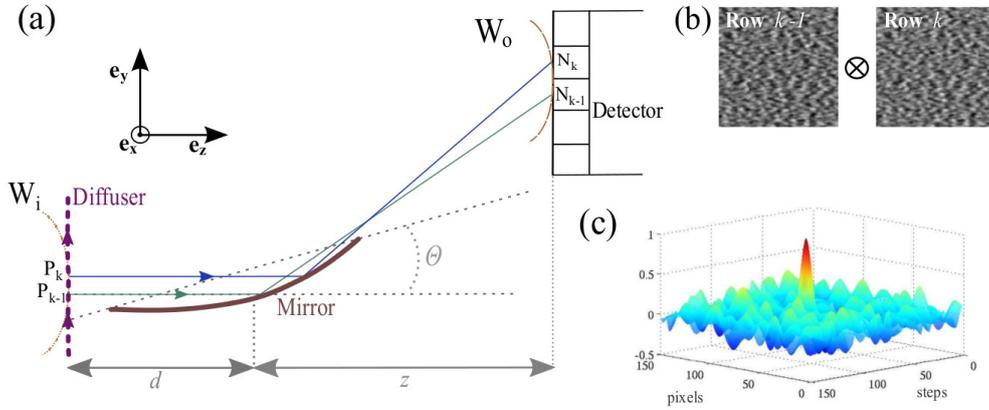


FIGURE 2.7 – Figure extraite de l'article [97] (a) Paramétrage de la mesure de front d'onde. (b) Tavelures mesurées par le détecteur à deux pixels adjacents sur le détecteur. (c) Résultat de la corrélation croisée des deux images de tavelures permettant de calculer et mesurer le délai entre l'observation d'un motif de tavelure dans une ligne de pixels et l'observation du même motif dans la ligne de pixels adjacente des tavelures (b).

La pente du miroir correspondante est calculée avec l'équation suivante.

$$Sl_k^0 \approx \frac{1}{2} \frac{Y_k - y_k^0}{z - z_k^0} \quad (2.12)$$

Les itérations suivantes sont effectuées pour les corrections de position  $z_k(y_k)$ , en utilisant les calculs précédents de la forme du miroir, par intégration de l'équation (2.12).

### Reconstruction de la topographie

Cette méthode de reconstruction est valide, sans approximation pour une surface réfléchissante.

Cependant, les miroirs multicouches ne fonctionnent pas comme des surfaces réfléchissantes. Il n'est ainsi pas possible, avec cette technique de reconstruire la topographie à trois dimensions de la structure multicouche. Si les ondes réfléchies par le substrat et par la multicouche déposée sur ce substrat s'avèrent équivalentes, cela permettra de démontrer que les multicouches se conduisent comme des surfaces réfléchissantes, et non plus comme un volume diffractant (vis-à-vis des effets de phase qu'ils introduisent).

Nous appliquerons cette reconstruction pour caractériser un substrat nu

éclairé en condition de réflexion totale. Ensuite, les phases des faisceaux réfléchis par le substrat et par la multicouche déposée seront comparées. Les mesures de phase des faisceaux réfléchis par les différentes multicouches permettront de confronter les simulations de défaut dans les multicouches pour retrouver les défauts à l'origine des lignes d'intensité présentes dans le faisceau réfléchi par les multicouches.

## 2.5 Caractéristiques de la ligne de lumière BM05

La ligne de lumière BM05 de l'ESRF est une ligne de lumière principalement dédiée à la caractérisation et au développement d'instrumentation pour les rayons X.

La source de rayons X est un aimant de courbure ("Bending Magnet" en anglais). Cela implique une taille de source différente verticalement et horizontalement (largeur à mi-hauteur : horizontale :  $270 \mu m$ , verticale :  $80 \mu m$ ) et donc des largeurs de cohérence spatiale différentes vu qu'elles dépendent de la taille de la source.

Les dispositifs expérimentaux utilisés pour mettre en œuvre ces diverses techniques sont :

- **Monochromateur à deux cristaux :**

Il permet d'obtenir un faisceau de rayons X monochromatique avec une intensité homogène sur toute la section du faisceau (contrairement au faisceau issu d'un monochromateur multicouche, objet de ce sujet de thèse). Toutes les mesures sur les multicouches ont été effectuées pour à une énergie de  $15 keV$ , laquelle présente un compromis satisfaisant entre le flux de photons disponible, l'angle de rasance pour les multicouches 091116 et 091124 (décrites dans le chapitre 3) et la taille des miroirs multicouches.

Pour une énergie  $E$  de  $15 keV$ , la résolution relative  $\Delta E/E \sim 2.1 \cdot 10^{-4}$  de ce monochromateur (à double réflexion) donne une longueur de cohérence longitudinale de  $0.39 \mu m$ . Les cohérences spatiales de la source, mesurées à  $40 m$ , sont de  $31 \mu m$  dans la direction verticale et de  $9 \mu m$  dans la direction horizontale [104].

- **Réfectomètre :**

Le réfectomètre permet de positionner le miroir dans le faisceau et d'appliquer des rotations. L'intérêt de ce réfectomètre est d'être positionné à environ  $6 m$  du bras mobile du diffractomètre 3 axes,

où est positionnée la caméra. Cela permet d'obtenir des images du faisceau réfléchi à des distances plus importantes que lorsque l'on utilise le diffractomètre 3 axes.

- **Diffractomètre 3 axes :**

Ce diffractomètre possède trois axes de translation permettant de positionner le détecteur, mais aussi d'autres éléments comme des berceaux pour appliquer des rotations à des échantillons placés proches du détecteur. Ici, le détecteur est positionné sur un axe mobile avec une course d'environ 1 m dans la direction du faisceau incident. Selon que la multicouche est positionnée sur un axe du diffractomètre 3 axes ou sur le réflectomètre, le faisceau réfléchi peut être observé sous plusieurs angles de réflexion et à des distances du miroir comprises respectivement entre 0.2 – 1.2 m et entre 6 – 7 m.

- **Diffractomètre 6 axes :**

Ce diffractomètre est celui utilisé pour les mesures de RCI et diffraction  $\theta/2\theta$  Imaging. La résolution angulaire de rotation appliquée à l'échantillon est de  $0.175\mu rad$ . Un bras rotatif sur lequel peut être fixé un détecteur permet de garder le plan de détection perpendiculaire au faisceau réfléchi. De plus le détecteur peut effectuer une translation dans la direction du faisceau réfléchi sur environ 1 m.

- **Détecteur 2D :**

Le détecteur principal utilisé est une caméra FRELON avec un capteur CCD sensible à la lumière visible associé à un scintillateur qui convertit les photons X incidents en lumière visible. La fonction d'étalement du point (ou réponse percussionnelle) est une fonction lorentzienne de largeur  $1.5\mu m$  à mi-hauteur. Le capteur est composé d'un damier ( $2048 \times 2048$ ) de pixels de  $15 \times 15\mu m^2$ , avec un grossissement  $\times 20$  (la taille effective du pixel est de  $0.75 \times 0.75\mu m^2$ ). Le champ de vue de l'ensemble est alors de  $1.53 \times 1.53 mm^2$ . Le temps d'acquisition est choisi en fonction du flux de photons dans le détecteur.

## **Chapitre 3**

# **Résultats expérimentaux**



*Structure d'une plume de paon, avec le rachis (axe central) qui soutient les barbes (axes secondaires) enchevêtrées par les barbules en vert.*

### 3.1 Introduction

Les campagnes de mesures avaient plusieurs objectifs. Les mesures et les résultats expérimentaux permettent de valider le modèle numérique que nous avons développé et les hypothèses de modélisation utilisées, mais aussi de caractériser les défauts des multicouches. Pour cela plusieurs techniques ont été appliquées aux multicouches ; des résultats ont permis de remplir ces objectifs. Sans totalement fournir de données de simulation, les résultats de RCI, d'imagerie  $\theta/2\theta$  et de Holographie ont conduit à l'élaboration et à la démonstration du potentiel de ces nouvelles méthodes de caractérisation des multicouches.

Ce chapitre commence par la présentation des principales caractéristiques des multicouches que nous avons utilisées.

Des lignes d'intensité, détectées après réflexion sur ces multicouches sur la ligne de lumière X, seront montrées pour différentes distances et conditions de cohérence spatiale de la source. Ces premières expériences visent à améliorer la maîtrise des contraintes expérimentales, mais aussi de répondre à certaines questions liées au type de défauts des multicouches.

Ensuite, les résultats des techniques expérimentales décrites dans le chapitre précédent seront présentés et commentés.

Les résultats des techniques d'imagerie en diffraction de Bragg, permettront de montrer le potentiel des techniques de caractérisation rayons X à trois dimensions des miroirs multicouches. Les problématiques (et leurs solutions) de ces techniques appliquées pour la première fois aux multicouches sont commentées.

Les résultats des méthodes de reconstruction de phase par Tavelures en champ proche et Holographie seront aussi présentés. La première tech-

nique (tavelures) n'a pas nécessité d'adaptation pour étudier les multicouches et les résultats obtenus seront exploités dans les simulations (chapitre 6). En revanche, l'analyse des mesures de Holographie a nécessité des modifications pour permettre d'étudier les multicouches. Il s'agit ici d'un travail exploratoire d'une autre technique de reconstruction de phase pour laquelle, le résultat d'une seule multicouche caractérisée avec cette méthode sera présentée.

Enfin, un résumé des résultats obtenus permettra d'esquisser les défauts des multicouches à l'origine des lignes d'intensité, que nous simulerons avec les modèles qui seront présentés plus loin.

## 3.2 Principales multicouches caractérisées

Pour espérer comprendre la problématique des multicouches avec les rayons X, de nouvelles techniques de caractérisation ont été mises en œuvre. Le but n'est pas de comparer de nombreuses multicouches en fonction de leur composition, du nombre de couches ou de la technique de déposition employée, car cela a déjà été fait [71, 63, 49, 69, 64, 65, 66]. Nous nous sommes particulièrement concentrés sur deux multicouches ayant des propriétés de déposition équivalentes. La déposition pour ces deux multicouches a été effectuée au laboratoire de déposition de multicouches de l'ESRF. Elle a consisté en l'alternance de couches de tungstène  $W$  et de carbure de bore  $B_4C$ , un empilement multicouche couramment utilisé pour les rayons X. La principale différence entre ces deux multicouches concerne la qualité de polissage de la surface du substrat sur laquelle la déposition a été réalisée. Pour la multicouche référencée 091116 le substrat est considéré de bonne qualité tandis que celui du miroir référencé 091124 est considéré de moindre qualité. Ainsi, nous avons deux miroirs multicouches dont la principale différence sera induite par la différence de substrat et non pas par des différences de matériaux ou de méthodes de déposition.

En limitant la comparaison à la qualité du substrat, nous espérons aussi vérifier l'influence du substrat sur la qualité d'un miroir multicouche. Cela sera un indice supplémentaire montrant que les défauts de hauteur dans la structure multicouche sont le facteur principal des lignes d'intensité. Or cette hypothèse est la base du travail de modélisation.

Multicouche 091116 :  
Déposition sur une couche de chrome :  $[W, B_4C]$ , 60 bicouches, période :  $4 \text{ nm}$

Surface de déposition :  $100\text{ mm} \times 7\text{ mm}$ , épaisseur du substrat :  $10\text{ mm}$   
Rugosité de surface du substrat :  $0.091\text{ nm rms}$  (root mean square), rugosité à la surface après déposition :  $0.14\text{ nm rms}$

Multicouche 091124 :

Déposition sur une couche de chrome :  $[W, B_4C]$ , 20 bicouches, période :  $4\text{ nm}$   
Surface de déposition :  $135\text{ mm} \times 40\text{ mm}$ , épaisseur du substrat :  $40\text{ mm}$   
Rugosité de surface du substrat :  $0.43\text{ nm rms}$

Une troisième multicouche a également été étudiée. Il s'agit d'une multicouche déposée au laboratoire de déposition de multicouches de l'ESRF sur un substrat de silice poli au laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Graduate School. Le but était de profiter des hautes performances de polissage de surface de silice, développées au laboratoire Charles Fabry. Ainsi, la reconstruction par tavelures en champ proche sera appliquée sur le substrat nu et après déposition de la multicouche. A partir de la topographie de surface du substrat et de l'onde réfléchiée par la multicouche nous pourrions évaluer à nouveau l'existence d'un lien entre la structure en couches et le substrat de départ.

Multicouche 170906 (IOGS-9025B) :

Déposition sur une couche de chrome :  $[W, B_4C]$ , 100 bicouches, période :  $2.5\text{ nm}$   
Surface de déposition :  $100\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ , épaisseur du substrat :  $10\text{ mm}$   
Substrat : silice superpolie, surface :  $90\text{ mm} \times 25\text{ mm}$ , épaisseur :  $10\text{ mm}$ , rugosité rms :  $0.12\text{ nm}$  avec profilomètre hétérodyne ZYGO 5500 ; erreur de planéité PV de la zone utile ( $80\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ ) :  $58\text{ nm}$  par interféromètre Fizeau à décalage de phase.

### **3.3 Observation des lignes d'intensité sur BM05**

#### **3.3.1 Effets des distances de propagation et qualité du substrat**

Nos premières observations ont consisté à comprendre les évolutions des motifs de ligne d'intensité selon les distances de propagation entre la multicouche et le détecteur et la qualité de la multicouche, pour une configuration expérimentale fixée.

Étant donné les propriétés communes (matériau et période) des multicouches 091116 et 091124, le choix de l'énergie du faisceau incident à  $15\text{ keV}$

( $\lambda = 0.8265 \text{ \AA}$ ) et la diffraction de Bragg dans le plan vertical, fixent la configuration expérimentale commune pour les deux multicouches. Cette énergie a été choisie en s'inspirant des mesures réalisées précédemment [63, 49, 69, 64, 65, 66].

Les images du faisceau réfléchi par les multicouches 091116 et 091124 à deux distances notablement différentes sont respectivement illustrées en figure (3.1.a) et figure (3.1.b). Ces images montrent le lien important entre la distance de propagation et la taille des motifs des lignes d'intensité. En effet, pour les deux multicouches, les lignes d'intensité sont plus visibles (car plus grosses) avec une distance de propagation de  $6.5 \text{ m}$  comparées à des distances plus petites comme  $0.8 \text{ m}$ .

Donc, la visibilité des lignes d'intensité dépend de la distance de propagation.

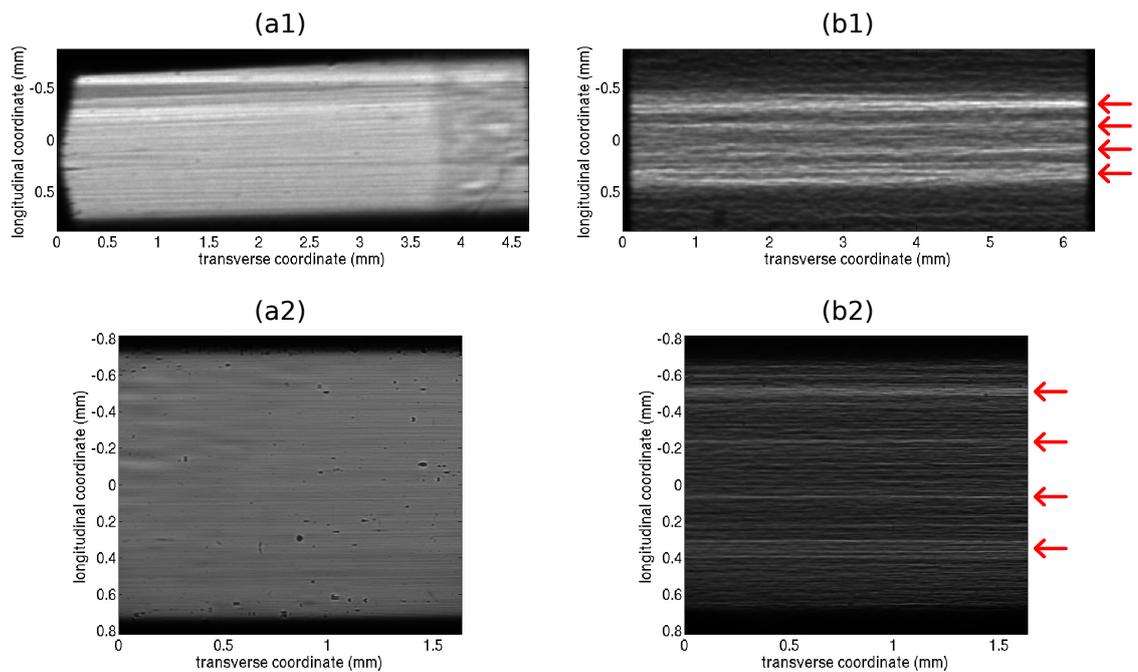


FIGURE 3.1 – Images des faisceaux réfléchis à la distance de propagation de  $6.5 \text{ m}$  pour la multicouche 091116 en (a1) et 091124 en (b1). (a2) et (b2) sont respectivement les images du faisceau réfléchi de la multicouche 091116 et 091124 à une distance de propagation de  $0.8 \text{ m}$ . Le détecteur utilisé est une caméra FRELON avec une optique de grandissement  $\times 2.5$  en (a1) et (b1) et  $\times 20$  en (a2), (b2). Des effets de focalisation peuvent expliquer les zones indiquées par les flèches rouges, où l'intensité est plus importante.

Enfin, le substrat semble avoir une forte influence sur les motifs de lignes d'intensité. La multicouche 091116, déposée sur le substrat de meilleure qualité, produit plus de lignes d'intensité. Celles-ci sont aussi plus fines et leur densité réduit le contraste. Le faisceau réfléchi par la multicouche 091124 montre des lignes d'intensité plus granuleuses mais aussi quatre zones d'intensité plus importantes, où l'on suspecte des effets de focalisation par quatre zones concaves dans la multicouche. Celles-ci s'observent avec les concavités de la figure (3.2.a).

Il est aussi important de noter que les lignes d'intensité ne sont pas toutes identiques dans le faisceau réfléchi et qu'elles n'ont pas la même longueur.

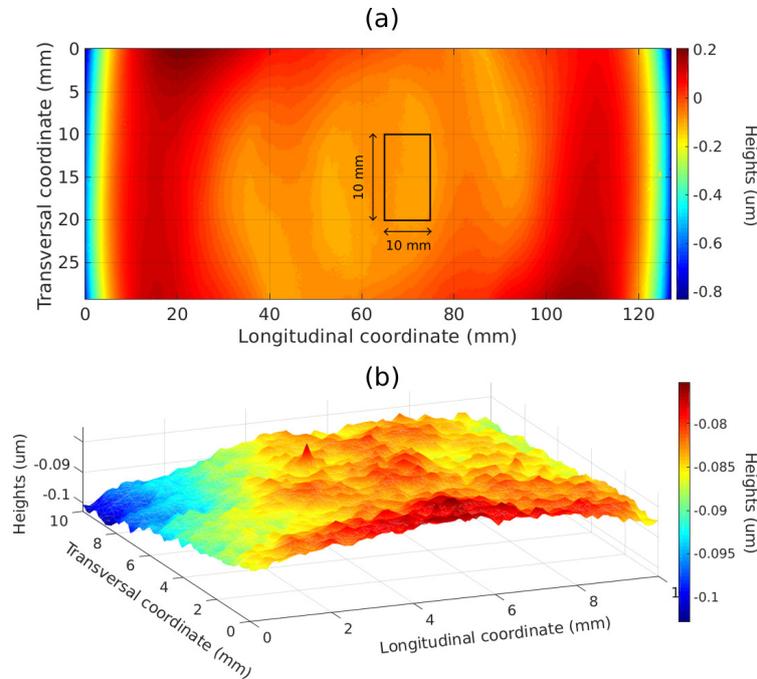


FIGURE 3.2 – (a) Topographie de hauteur à la surface de la multicouche 091124 par interférométrie visible type Fizeau (résolution spatiale  $135.1 \times 135.1 \mu\text{m}^2$ ). La distribution rms des hauteurs est de  $0.1368 \mu\text{m rms}$ . (b) agrandissement de la zone encadrée dans la topographie (a), la hauteur moyenne est  $-0.085 \mu\text{m}$  et la rugosité  $0.085 \mu\text{m rms}$ .

### 3.3.2 Rotations des multicouches

#### Forme des défauts

remarque : La direction longitudinale de la multicouche (généralement dans direction de la longueur) correspond à la direction de la surface supérieure de la multicouche, laquelle est quasiment colinéaire à la direction de propagation du faisceau du fait de l'angle rasant de réflexion des miroirs multicouche. La direction transverse est, dans le plan de réflexion de la surface de la multicouche, orthogonale à la direction longitudinale .

L'hypothèse de travail principale du projet de thèse est que les lignes d'intensité sont produites par des défauts de hauteur, ce qui suppose que ces derniers soient invariants par translation dans la direction transverse, c'est-à-dire qu'ils prendraient la forme de crêtes et vallées orientées perpendiculairement à la direction longitudinale de la multicouche.

Plusieurs facteurs pourraient causer ce type de défaut : polissage, ou la déposition par translation. Cependant, les mesures de topographie par interférométrie Fizeau n'ont jamais montré de telles crêtes, ni de vallées à la surface de substrat ou de la multicouche.

Pour vérifier simplement cette hypothèse, nous avons effectué une rotation de  $90^\circ$  autour de l'axe normal à la surface du miroir 091124 (figure (3.3.c)) pour orienter ces éventuelles crêtes et vallées parallèlement au plan de diffraction. Si il y a un changement d'orientation des lignes d'intensité (horizontale deviennent verticale), alors cela traduira un effet transverse (dans le cas contraire, les lignes d'intensité disparaîtront).

Le test a été fait avec la multicouche 091124, car elle seule était suffisamment large pour obtenir un faisceau réfléchi exploitable.

Les résultats présentés figure (3.3) montrent que les défauts dans la multicouche n'ont pas la même forme d'invariance que les lignes d'intensité et confirment que les effets transverses dans la multicouche sont négligeables. Les défauts dans la multicouche ne sont pas des crêtes et vallées mais un ensemble de pics répartis aléatoirement à l'image d'un "panier d'œufs".

#### Effet de la largeur de cohérence spatiale transverse

Pour tester expérimentalement l'effet de la cohérence transverse sur la réflexion des multicouches, nous avons profité de la dissymétrie des largeurs de cohérence de la source de lumière BM05, dans les directions verticale ( $31 \mu m$ ) et horizontale ( $9 \mu m$ ).

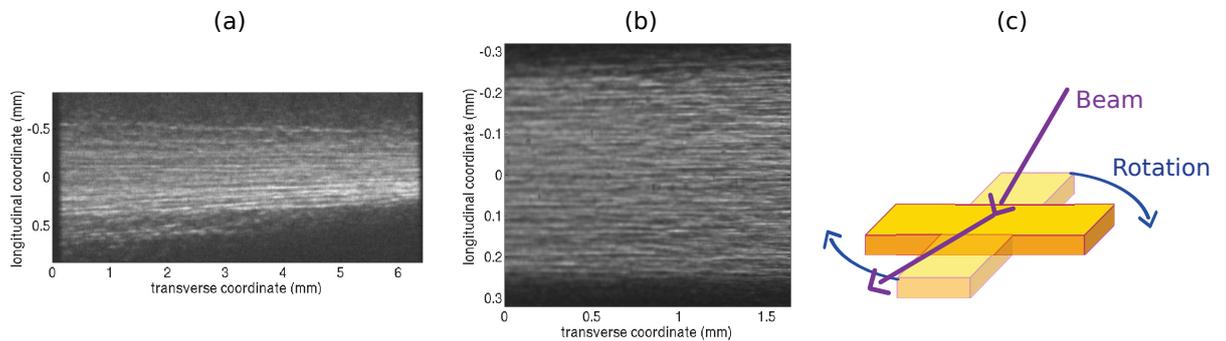


FIGURE 3.3 – Images du faisceau réfléchi par la multicouche 091124 après rotation de  $90^\circ$ , enregistrées à 0.8 m (a) et à 6.5 m (b) du miroir. (c) Description de la rotation de  $90^\circ$  autour de l'axe normal à la surface de la multicouche par rapport au faisceau incident.

Les effets de phase issus des défauts de la multicouche génèrent des interférences, lesquelles induisent les motifs d'intensité observés. Cependant, ces interférences ne sont possibles que dans la limite des longueurs de cohérence temporelle et spatiale. Bien que les sources synchrotrons soient polychromatiques, l'usage de monochromateurs à cristaux permet de définir l'énergie des photons avec une sélectivité permettant d'obtenir un faisceau avec une grande cohérence temporelle. La diffraction des rayons X dans le plan vertical (miroir placé horizontalement) bénéficie de la meilleure cohérence disponible alors que la situation inverse (miroir placé verticalement) réalisera une diffraction dans le plan horizontal, donc avec une cohérence réduite, laquelle va réduire le contraste de tout motif créé par interférence. Les images présentées sur la figure (3.4), (a) et (b) ont été obtenues avec la multicouche positionnée verticalement (c).

Les résultats expérimentaux (figure (3.4)) montrent que le contraste des motifs d'intensité est très fortement réduit, comparé aux images obtenues figures(3.1.a1) et (3.1.a2) avec un positionnement horizontal du miroir. Les lignes d'intensité sont toujours présentes mais moins visibles et conservent la même orientation par rapport à la surface de la multicouche. En conséquence, positionner une multicouche orthogonalement à la direction où la largeur de cohérence spatiale est la plus élevée permet de limiter les phénomènes d'interférences dans le faisceau réfléchi et donc l'apparition des lignes d'intensité (tout en conservant les cohérences spatiales verticale et horizontale de la source, si l'on considère que la multicouche ne dégrade pas la cohérence). Cela démontre que les lignes d'intensité sont le résultat d'effet de phase et non pas de "focalisation - défocalisation".

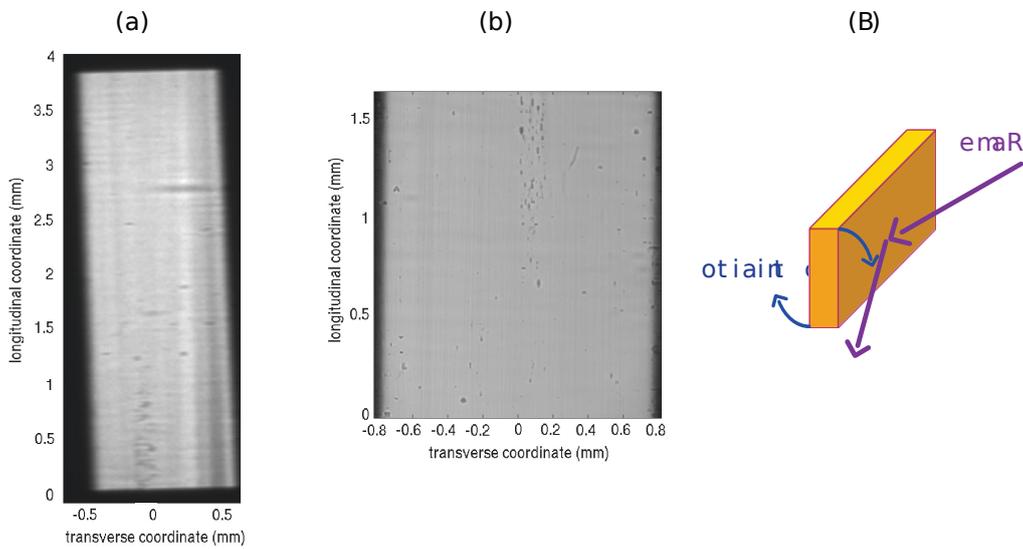


FIGURE 3.4 – (a) et (b) sont respectivement les images du faisceau réfléchi par la multicouche 091116 avec la rotation de  $90^\circ$ , à 0.8 m et 6.5 m. (c) La rotation de  $90^\circ$  de la multicouche par rapport au faisceau incident échange la projection des largeurs de cohérence sur la multicouche.

### 3.3.3 Origine du contraste en forme de ligne

On vient de montrer que les lignes d'intensité sont les conséquences d'effet de phase et que les défauts susceptibles de produire ces effets de phase ne sont pas un ensemble de crêtes et de vallées.

Pour expliquer la forme du contraste d'intensité dans le faisceau réfléchi, à partir de défauts distribués aléatoirement dans la multicouche, on peut définir le facteur de contraste de phase  $K(\nu) = \sin(\pi\lambda z\nu^2)$  à partir de la relation (2.7) établie pour la reconstruction Holographique. On rappelle que  $z$  est la distance de propagation,  $\lambda$  la longueur d'onde, et  $\nu$  la fréquence spatiale des défauts.

Dans le plan réflecteur de la multicouche, on définit les axes  $\vec{u}_x$  dans la direction de la projection du faisceau incident et un axe orthogonal  $\vec{u}_y$  (figure (3.5)). Dans ce plan les fréquences spatiales correspondantes sont  $\nu_x$  et  $\nu_y$ . Les fréquences spatiales de défaut (de phase) doivent être similaires dans les deux directions. Cependant, dans le plan orthogonal à la direction de propagation, l'angle de projection  $\theta \approx 10^{-2} \text{ rad}$  correspond à l'angle d'incidence et à l'angle de réflexion, la fréquence spatiale  $\nu'_x = \nu_x / \sin\theta$ .

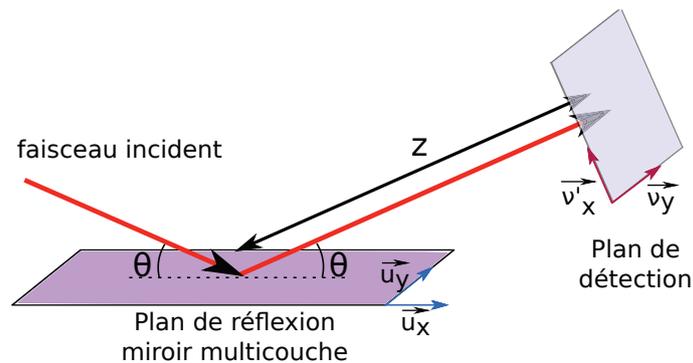


FIGURE 3.5 – *Système de coordonnées pour les facteurs de contraste de phase  $K(v'_x)$  et  $K(v'_y)$ .*

Les facteurs de contraste de phase à la distance de propagation  $z$  sont alors :

$$K(v'_x) = \sin(\pi\lambda z (v_x/\sin\theta)^2), \quad K(v'_y) = \sin(\pi\lambda z v_y^2)$$

Supposons  $\lambda = 0.1 \text{ nm}$ ,  $z = 1$  et  $v_x = v_y = 0.1 \mu\text{m}^{-1}$  (fréquence spatiale de période  $10 \mu\text{m}$ ). On obtient ainsi  $\lambda z v_{x,y} = 1$ ,  $K(v_y) = 1$  et  $K(v'_x) = 10^{-4}$ . Cela montre que le contraste est important dans une direction seulement, et conduit à la création des motifs de ligne d'intensité, sans structure en 'crêtes et vallées'.

### 3.4 Imagerie par diffraction de Bragg

Cette partie montre, à titre d'exemple les résultats obtenus pour la multicouche 091116 (les résultats de la multicouche 091124 sont donnés en annexe B). Elle permet de démontrer avec ces résultats, la faisabilité et le potentiel de ces techniques pour la caractérisation des multicouches. Plus que l'exploitation des résultats pour les simulations, ce travail expérimental est important car il répond aux principales problématiques et aux adaptations nécessaires pour l'application aux multicouches.

En effet, ce type de mesure appliqué pour la première fois aux multicouches n'est pas parfait et a révélé de nombreux problèmes. Ces problèmes et les solutions trouvées sont abordées dans cette partie. Cependant, le futur utilisateur trouvera en annexe C, les détails des contraintes expérimentales à respecter dans sa configuration expérimentale, ainsi que les traitements numériques et les analyses nécessaires.

### 3.4.1 Différences entre cristaux et multicouches

**Définition voxel :** Un voxel est la contraction de "volume" et "élément" désignant un volume élémentaire de résolution, c'est-à-dire un pixel à trois dimensions.

La technique de Rocking Curve Imaging est très utilisée pour les cristaux mais son application aux miroirs multicouches est une première (tout comme l'imagerie  $\theta/2\theta$ ). Une multicouche peut être considérée comme un "cristal" et donc à priori être caractérisée avec ces techniques.

Les largeurs à mi-hauteur des "Rocking Curves" des multicouches sont très différentes des cristaux. Elles sont de l'ordre de  $5 \mu rad$  pour les cristaux, et de l'ordre de  $500 \mu rad$  pour les multicouches, soit cent fois plus.

La rotation de l'échantillon déplace l'empreinte dans le plan de détection de la diffraction par un voxel de l'échantillon. Les analyses développées dans le chapitre précédent (Chap. 2) des "Rocking Curve" ou des courbes  $\theta/2\theta$  sont possibles si et seulement si il est possible de faire correspondre de manière biunivoque un voxel avec un pixel (cela pour tous les pixels du détecteur). C'est à dire que chaque voxel illumine toujours les mêmes pixels, pour tous les angles de rotation de l'échantillon.

Dans le cas des cristaux le déplacement engendré par la rotation est suffisamment petit pour que l'empreinte d'un voxel reste localisée dans un seul pixel.

Dans le cas de la multicouche, le déplacement du faisceau diffracté dans le plan de détections est environ cent fois supérieur à celui d'un cristal (car sa largeur à mi-hauteur de "Rocking Curves" est cent fois celle d'un cristal). En fonction de la distance entre la multicouche et le détecteur, le déplacement de l'empreinte d'un voxel peut s'étaler sur plusieurs pixels voisins, si le détecteur est fixe (mesure de RCI). Dans ce cas il n'est pas possible de faire correspondre exactement un pixel à un seul voxel de la multicouche.

Une solution pour les mesures de RCI peut consister à moyenner plusieurs pixels de manière à avoir un pixel virtuel dont la taille sera supérieure au déplacement. Cependant, cela réduira la résolution spatiale de reconstruction de la multicouche, laquelle est déjà limitée par l'angle rasant.

Dans ce cas, le nombre de pixels à moyenner pour la RCI est :

$$N_{pix} = \frac{D \sin(\theta_{max} - \theta_0)}{t_{pix}} \quad (3.1)$$

où,  $D$  est la distance multicouche-détecteur,  $t_{pix}$  la taille du pixel, et  $\theta_0$ ,  $\theta_{max}$  sont respectivement le premier et le dernier angle de réflexion de la mesure de RCI.

Pour les mesures d'imagerie  $\theta/2\theta$ , le détecteur est mobile et suit le faisceau spéculaire. Dans ce cas, la relation biunivoque des pixels avec les voxels est vérifiée (sans avoir à moyenner sur plusieurs pixels).

### 3.4.2 Image du faisceau diffracté

#### Configuration expérimentale

L'énergie du faisceau monochromatique de rayons X est de  $15\text{ keV}$ , la longueur d'onde associée est  $0.8265\text{ \AA}$ . Le détecteur utilisé est la caméra FRELON avec une optique  $\times 20$ .

Les dimensions du faisceau sont choisies de manière à ce que la surface illuminée de la multicouche soit constante, quel que soit l'angle de la multicouche par rapport au faisceau incident. Dans notre cas, la largeur du faisceau est fixée par le champ de vue de la caméra FRELON ( $1.53 \times 1.53\text{ mm}^2$ ) et de manière à ce que la multicouche soit illuminée sur toute sa longueur, pour tous les angles de rotation.

Pour la totalité des mesures, le plan de diffraction est vertical, c'est-à-dire que la surface du miroir est positionnée horizontalement et le faisceau réfléchi est orienté vers le haut.

#### Paramètres de la mesure du miroir 091116

Le miroir est placé sur le diffractomètre 6 axes à  $19\text{ m}$  du monochromateur. Le détecteur est positionné à une distance de  $30\text{ cm}$  du centre de l'échantillon. La relation de Bragg donne un angle de Bragg théorique de  $10.3\text{ mrad}$  et l'angle de réflexion maximale mesuré est  $10.9\text{ mrad}$ .

La mesure de RCI est effectuée pour des angles de réflexion compris entre  $10.38\text{ mrad}$  et  $11.55\text{ mrad}$  (avec 250 points de mesure), soit un pas de mesure de  $4.68\text{ }\mu\text{rad}$ , donc vingt-cinq fois supérieur à la résolution ultime du diffractomètre. Le temps d'acquisition pour chaque angle de réflexion est de  $30\text{ s}$ . Quelques images obtenues sont présentées figure (3.6).

### 3.4.3 Traitement et analyse des données

Les résultats présentés dans les paragraphes suivants sont obtenus à partir des mesures de RCI. Il est en effet possible d'obtenir les résultats de RCI et d'imagerie  $\theta/2\theta$  avec les données de seulement une de ces deux techniques. Un traitement numérique complémentaire doit être effectué. Dans ce cas, les images du faisceau réfléchi (de la mesure de RCI) sont aussi

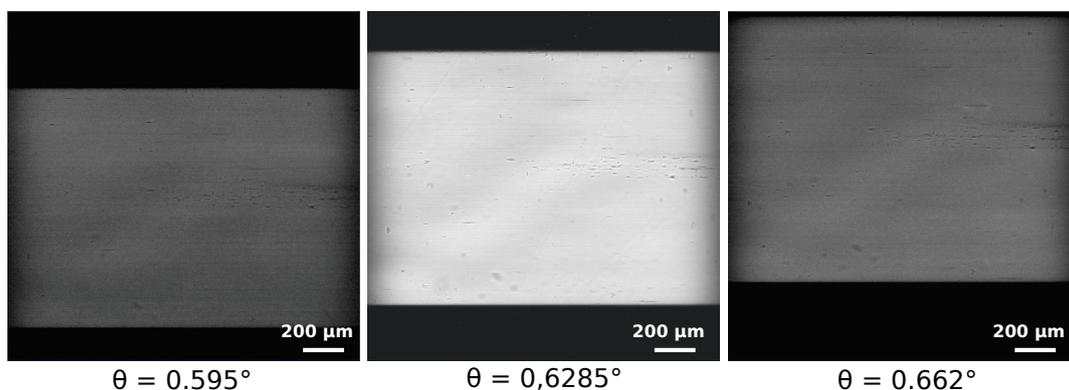


FIGURE 3.6 – Signal réfléchi par la multicouche 091116 dans le détecteur pour différents angles de réflexion. Le contraste a été augmenté pour les images de  $\theta = 0.595$  et  $0.662^\circ$  car l'intensité réfléchie était très faible, donc l'échelle d'intensité est différente pour les trois images. On peut remarquer le déplacement vertical du signal réfléchi, lié à la largeur de la "Rocking Curve" pour une multicouche.

recentrées pour obtenir des données d'imagerie  $\theta/2\theta$ . Les traitements numériques (dont ce point spécifique) et l'analyse des données pour la RCI et l'imagerie  $\theta/2\theta$  sont détaillés dans l'annexe C.

L'analyse consiste à ajuster une fonction "log-normale" aux courbes de réflectivité et à déterminer les paramètres de position des pics de Bragg (PPB), de largeur à mi-hauteur et des valeurs d'intensité intégrées sous la courbe, puis de faire correspondre les erreurs de pentes ou erreurs de période. Pour cela, les résultats présentés sont actuellement obtenus en exploitant seulement l'information de PPB.

Un traitement de données supplémentaire doit être effectué pour retirer la divergence angulaire du faisceau. Ce point est aussi abordé en annexe C. La divergence du faisceau induit à la surface de la multicouche, un gradient sur l'angle rasant du faisceau incident et produit un gradient de PPB.

Il est possible d'estimer la divergence réelle du faisceau afin de séparer ces effets avec un potentiel gradient de période dans la structure multicouche introduit volontairement lors de la déposition. Mais, nous avons ici, choisi de supprimer complètement le gradient de PPB dans la direction verticale en considérant qu'il est induit par la divergence du faisceau seul.

### 3.4.4 Résultat $\theta/2\theta$ : multicouche 091116

Pour obtenir la cartographie des périodes locales de la multicouche à partir de celles des PPB, il suffit d'appliquer la relation de Bragg  $d(x, y) = \lambda/2 \sin(\theta_B(x, y))$  (voir chapitre 2).

#### Cartographie des périodes locales de la multicouche 091116

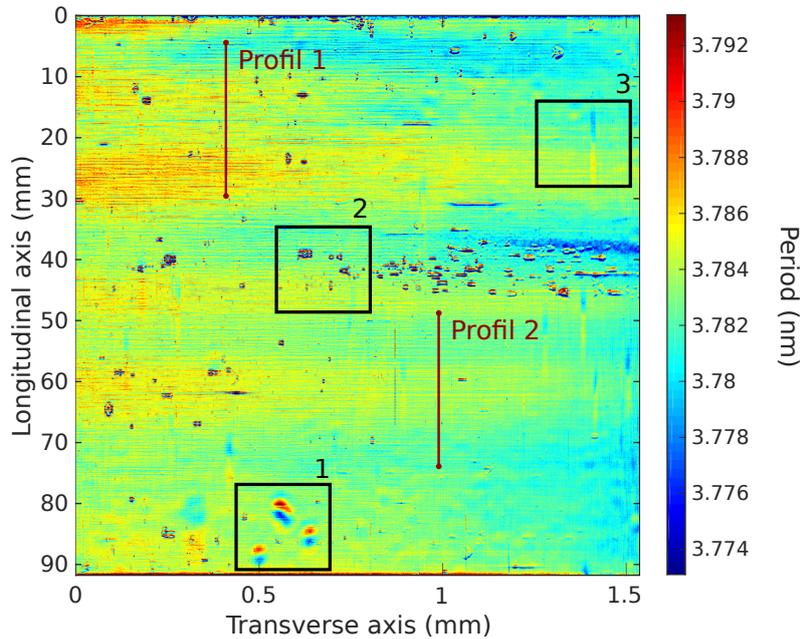


FIGURE 3.7 – Cartographie des périodes locales de la multicouche 091116. Les échelles correspondent à la projection dans le plan de la multicouche. Deux profils sont choisis pour plus de détails sur les variations de période locale. Plusieurs types de défaut sont identifiables dans les encadrés numérotés. L'origine de ces défauts sont des imperfections à la surface de la multicouche, dans le faisceau ou encore dans le détecteur. Leurs origines sont plus largement commentées en annexe C.

Le résultat obtenu est illustré figure (3.7) et on peut y distinguer quatre types de défaut. Les défauts numérotés un à trois sont des imperfections dont l'origine est détaillée en annexe C (§C.5). Le type de défaut qui correspond (à priori) à des défauts de période est présent partout sur la figure (3.7).

Pour mieux commenter ce résultat des variations de période locale, deux profils sélectionnés dans la cartographie de la figure (3.7) sont présentés figure (3.8).

On observe que les fluctuations de période ne peuvent pas être associées à du bruit, car il y a plusieurs points intermédiaires entre les maximums et les minimums. Les écarts de période maximum mesurés sur les profils 1 et 2 sont (respectivement),  $1.06 \cdot 10^{-2} \text{ nm}$  et  $0.49 \cdot 10^{-2} \text{ nm}$ . La période d'oscillation (spatiale) du fondamental des profils (1 et 2) sont (respectivement)  $0.555 \text{ mm}$  et  $0.625 \text{ mm}$ .

Les gradients de période locale que l'on mesure pour les deux profils sont montrés figure (3.8), et l'on peut obtenir des gradients période maximale de  $\pm 0.04 \text{ nm/mm}$  (profil 1) et  $\pm 0.02 \text{ nm/mm}$  (profil 2). En moyenne sur l'ensemble de chaque profil, le gradient de période est respectivement  $2.695 \cdot 10^{-4} \text{ nm/mm}$  et  $-1.677 \cdot 10^{-5} \text{ nm/mm}$ . Les très faibles gradients moyens sont normaux car nous avons retiré le gradient vertical global, du fait de la divergence du faisceau.

Les gradients de période maximale mesurés pour le miroir 091116 sont inférieurs au gradient minimal d'épaisseur de déposition contrôlable, avec la machine utilisée. Cela suggère que, les gradients de période pourraient être une contribution supplémentaire aux effets de phase à l'origine des lignes d'intensité.

Leur comparaison avec les variations d'intensité qui forment les lignes d'intensité (figure (3.9)), ne montre aucune correspondance entre les variations de période et d'intensité. Les fluctuations de l'épaisseur de bicouche ont une fréquence équivalente pour les deux profils, contrairement aux intensités. Cette différence de fluctuation entre période et intensité reste néanmoins cohérente, car il faut prendre en compte les effets de la propagation entre la multicouche et le détecteur.

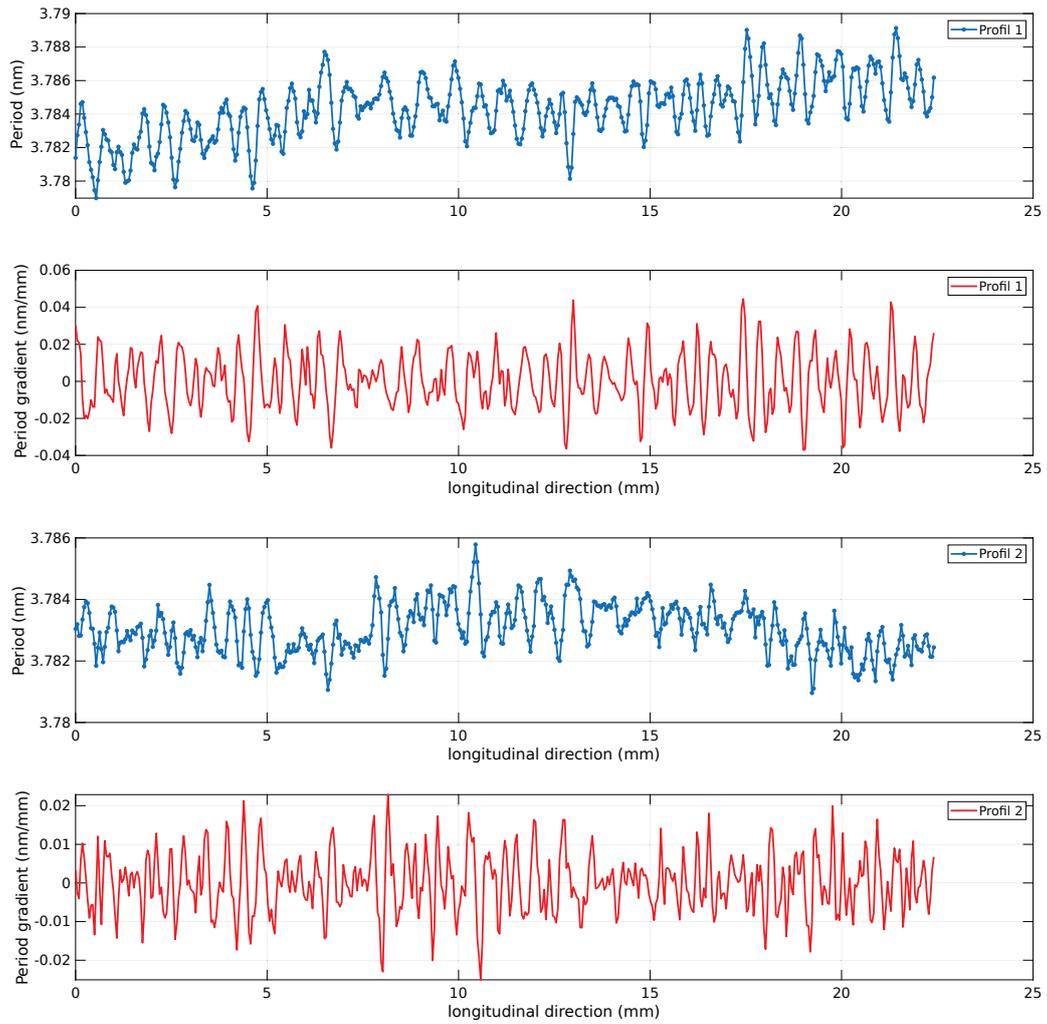


FIGURE 3.8 – Variations de période locale (bleu) et de gradient de période (rouge) selon les profils 1 et 2 (figure (3.7)).

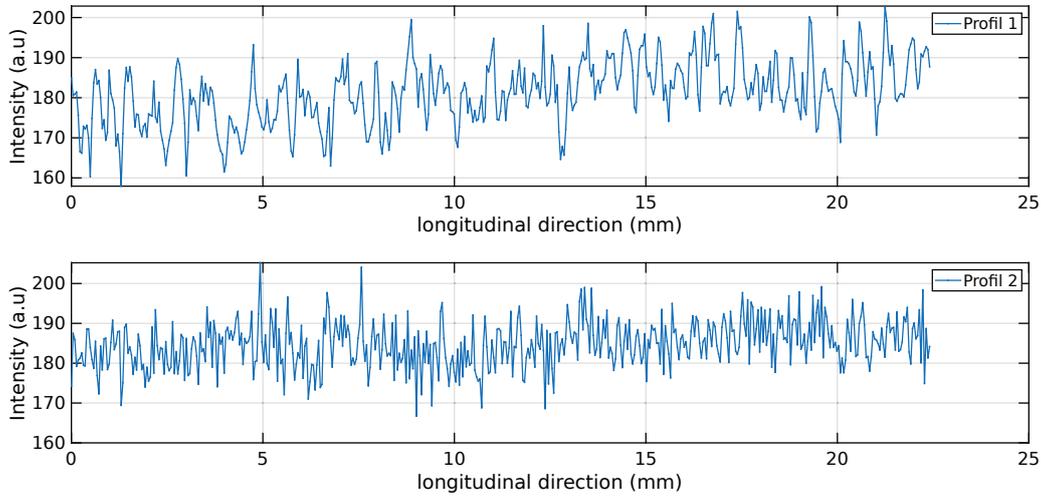


FIGURE 3.9 – Variations des intensités mesurées dans le détecteur pour l'angle de réflexion 0.623 degré (centre de la courbe de réflectivité moyenne), selon les profils 1 et 2 (figure (3.7)).

### 3.4.5 Résultat RCI : multicouche 091116

Pour avoir une correspondance biunivoque entre voxels et pixels, il faut moyenner les intensités de 468 pixels dans la direction verticale (avec la formule (3.1) et la configuration expérimentale décrite précédemment). La moyenne d'autant de pixels réduit fortement la résolution spatiale que nous obtenons sur la multicouche. Le résultat attendu (dans cette configuration) est la présence de peu de variation des PPB, correspondant à des erreurs de pente "locale" de la structure multicouche.

Ainsi, la figure (3.10) montre la cartographie des PPB pour chaque voxel de la multicouche. On observe alors les variations de PPB qui sont peu nombreuses (comme attendu) et qui sont interprétées comme les erreurs de pente moyenne dans les couches, dans chaque voxel. Pour obtenir la cartographie des erreurs de pente de la multicouche à partir de celle des PPB, il suffit d'appliquer l'égalité  $\delta\theta(x, y) = \Delta\theta(x, y)$  (voir chapitre 2). Où  $\delta\theta$  est l'erreur de pente et  $\Delta\theta(x, y) = PPB(x, y) - \langle PPB \rangle$  l'écart de position du pic de Bragg (PPB).

Comme nous l'avons dit précédemment, l'hypothèse d'équivalence entre les voxels et les pixels est vérifiée si nous moyennons sur 468 pixels et donc sur autant de voxels. Alors, la taille des voxels dans la direction

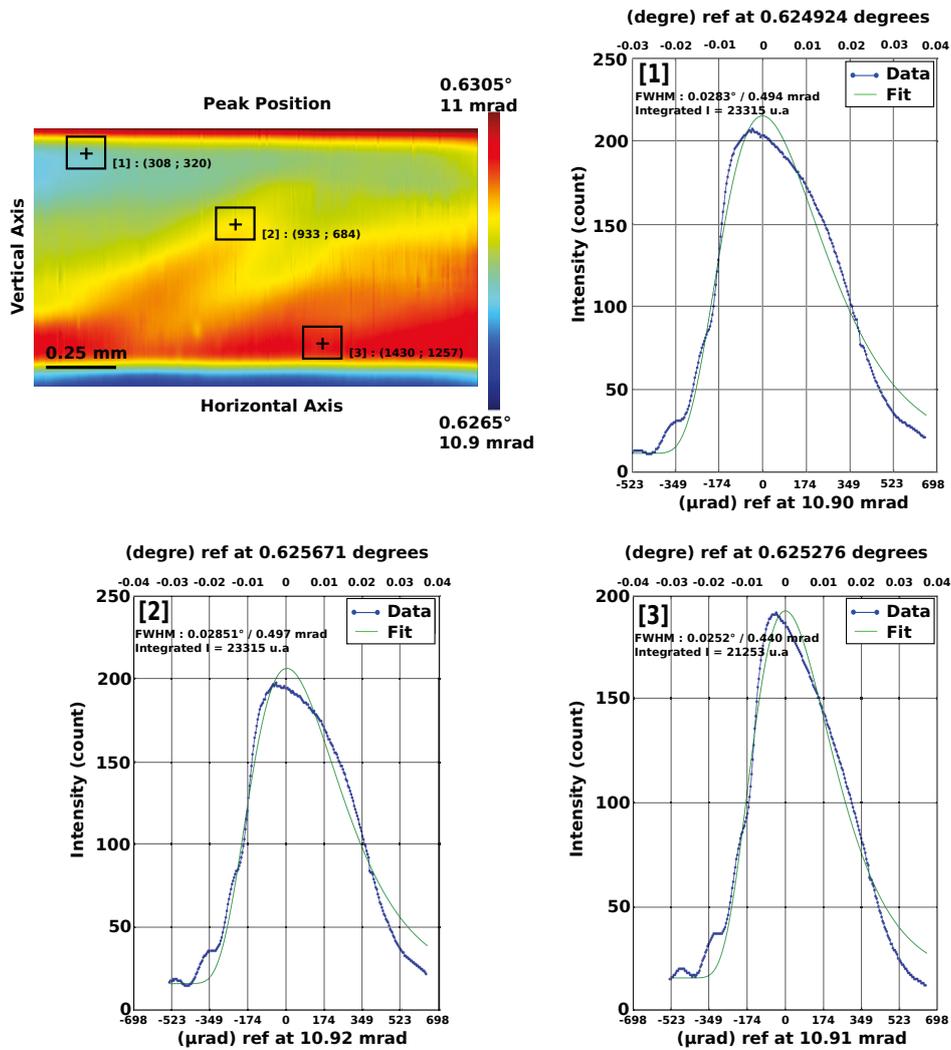


FIGURE 3.10 – l'image en haut à gauche est le résultat des PPB obtenues pour chaque voxel de la multicouche 091116. Les "Rocking Curve" de trois points sont détaillées avec les courbes expérimentales et leurs fonctions ajustées de type log-normal sont montrées.

longitudinale est d'environ 32 mm, ce qui ne permet pas d'obtenir les erreurs de pente locale d'une multicouche avec une résolution intéressante pour le problème des lignes d'intensité.

Nous pouvons cependant étudier la "Rocking Curve" moyenne de toute la multicouche, figure (3.11). Nous avons comparé cette courbe de réflectivité avec des simulations de réflectivité, où le paramètre inter-diffusion entre les couches a été estimé, entre 0.35 et 0.4 nm.

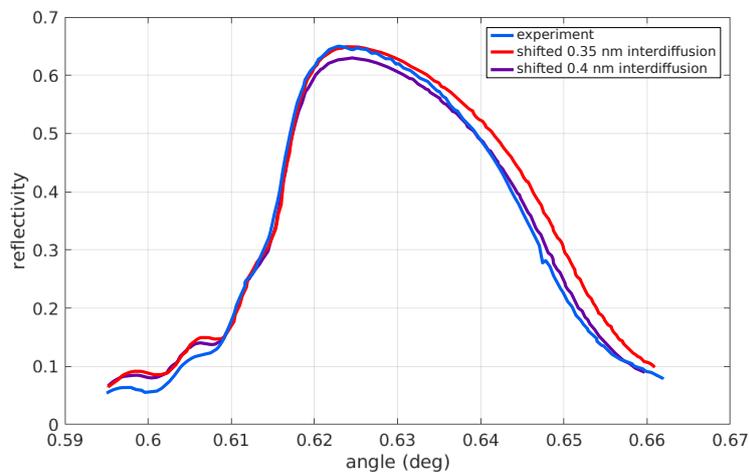


FIGURE 3.11 – La courbe de réflectivité moyenne de la multicouche 091116 en bleu est encadrée par les courbes de réflectivité simulées [3] ([henke.lbl.gov](http://henke.lbl.gov)) avec différentes largeurs d'inter-diffusion entre les couches. La position de la courbe expérimentale était décalée par rapport aux cas simulés. Cela s'explique par l'offset expérimental sur l'angle zéro.

### 3.4.6 Conclusion imagerie par diffraction de Bragg

Nous avons effectué à partir de données de mesure de RCI les analyses pour les mesures de " $\theta/2\theta$  Imaging" et de "RCI". Les traitements de données nécessaires pour cela sont détaillés en annexe C.

Les résultats d'analyse de RCI et d'imagerie  $\theta/2\theta$  (091116 §3.4.5 et 091124 en annexe B) ont montré que les techniques d'imagerie en diffraction de Bragg appliquées aux multicouches fonctionnent.

Notre tentative d'appliquer l'imagerie par diffraction de Bragg aux multicouches montre la difficulté que représente la largeur à mi-hauteur des "Rocking Curve" de multicouche pour la RCI. En conséquence, la résolution spatiale de la mesure des erreurs de pente "locales" peut être limitante pour la caractérisation des multicouches.

Pour remédier à cela, des adaptations expérimentales du montage sont nécessaires, comme obtenir une zone d'illumination constante ou réduire la distance multicouche - détecteur au minimum.

La résolution angulaire du diffractomètre et la configuration expérimentale permettent de mesurer les écarts de PPB et donc des erreurs de pente de l'ordre du  $0.175 \mu rad$  (soit  $10^{-5} \text{ }^\circ$ ), et des erreurs de période avec une très grande sensibilité ( $10^{-14} m$ ). On rappelle que cette sensibilité ne signifie pas que la méthode  $\theta/2\theta$  Imaging permette de mesurer des objets subatomiques, comme le noyau des atomes. Elle mesure une moyenne de l'épaisseur de bicouche dans un voxel. Cette sensibilité ne s'applique donc pas à un objet (une bicouche), mais à un ensemble d'objets (de bicouches). Ce travail est pionnier pour les multicouches. L'interprétation des résultats doit être affinée avec des campagnes de mesure supplémentaires, en utilisant les solutions détaillées dans les annexes C et D. Avec des améliorations dans l'analyse cela pourrait conduire à élaborer une technique performante de caractérisation rayons X des miroirs multicouches à trois dimensions.

Pourtant, à ce stade de développement, nous ne sommes pas en mesure de profiter de ces méthodes pour obtenir des informations pertinentes pour ce projet de thèse. Cependant, d'autres méthodes mises en œuvre sont proposées, dont celle proposée maintenant (section 3.5).

## 3.5 Méthode des tavelures en champ proche

### 3.5.1 Mesures des tavelures

Le principe de mesure que nous avons énoncé dans le chapitre précédent a été réalisé expérimentalement sur la ligne de lumière BM05 sur un diffractomètre 3-axes. Pour mesurer la déformation du front d'onde, le diffuseur illustré figure (2.6) est soit du papier de verre d'indice P120 (taille moyenne des grains :  $125\ \mu\text{m}$ ), soit une membrane biologique composé d'acétate de cellulose  $8\ \mu\text{m}$ . Les translations du diffuseur sont assurées par un actuateur piézoélectrique. Les configurations expérimentales utilisées sont détaillées selon les miroirs caractérisés.

#### Configuration expérimentale miroir 091116

Le faisceau de rayons X utilisé est monochromatique de longueur d'onde  $\lambda = 0.826\ \text{\AA}$  ( $E = 15\ \text{keV}$ ). Le détecteur est composé d'une caméra FRELON avec une matrice de  $2048 \times 2048$  pixels et une optique  $\times 10$  pour une taille de pixel effective de  $1.4 \times 1.4\ \mu\text{m}^2$  et un champ de vue de  $2.8 \times 2.8\ \text{mm}^2$ . L'angle de Bragg mesuré et utilisé du miroir, est de  $\theta_B = 0.6285^\circ$  ( $11.0\ \mu\text{rad}$ ). Le déplacement du diffuseur (membrane d'acétate de cellulose) est effectué dans la direction verticale sur une distance de  $48\ \mu\text{m}$  avec un pas de  $0.4\ \mu\text{m}$ .

#### Configuration expérimentale miroir 091124

Le faisceau de rayons X utilisé est monochromatique de longueur d'onde  $\lambda = 0.826\ \text{\AA}$  ( $E = 15\ \text{keV}$ ). Le détecteur est composé d'une caméra FRELON ( $2048 \times 2048$  pixels) couplée à une optique  $\times 20$ , la taille effective des pixels est de  $0.75 \times 0.75\ \mu\text{m}^2$  et le champ de vue est de  $1.53 \times 1.53\ \text{mm}^2$ . L'angle de Bragg mesuré et utilisé du miroir est de  $\theta_B = 0.636^\circ$  ( $11.1\ \mu\text{rad}$ ). Le déplacement vertical sur une plage de  $37.5\ \mu\text{m}$  du diffuseur (papier de verre P120) est effectué avec un pas de  $0.25\ \mu\text{m}$ .

#### Configuration expérimentale substrat du miroir 170906

Pour caractériser la surface réfléchissante du substrat, nous devons positionner le miroir à un angle inférieur à l'angle dit de réflexion totale. Cependant le choix de l'énergie du faisceau X et de l'angle de réflexion associé constituent un compromis délicat à définir pour obtenir des images exploitables. Ainsi, pour un faisceau monochromatique d'énergie  $17\ \text{keV}$ , réfléchi par une surface de silicium, un angle de  $1.7\ \text{mrad}$  permet d'obtenir un coefficient de réflexion supérieur à 80%. Cependant, la taille de l'image projetée sur le détecteur sera très faible ( $153\ \mu\text{m}$  dans la direction verticale). Pour augmenter la taille de l'image, nous avons caractérisé le

substrat à une énergie de  $8\text{ keV}$ , laquelle permet un angle de réflexion de  $\theta = 37\text{ mrad}$  ( $0.21^\circ$ ), permettant un coefficient de réflexion de 90% et une résolution comparativement deux fois plus grande que celle obtenue avec la configuration mentionnée précédemment.

La caméra utilisée est une PCO avec un champ de vue de  $1.29 \times 1.29\text{ mm}^2$ , avec une matrice de  $2048 \times 2048$  pixels et une taille effective de pixel de  $0.63 \times 0.63\ \mu\text{m}^2$ . La membrane utilisée pour générer les tavelures est un filtre biologique composé d'acétate de cellulose avec une taille de pore statistique de  $8\ \mu\text{m}$ . Le déplacement vertical est assuré par un actuateur piézoélectrique permettant de couvrir une distance de  $37.5\ \mu\text{m}$  avec un pas de  $0.25\ \mu\text{m}$ .

### **Configuration expérimentale multicouche 170906**

La multicouche est illuminée par un faisceau de rayons X monochromatique de longueur d'onde  $\lambda = 0.729\ \text{\AA}$  ( $E = 17\text{ keV}$ ). Les mêmes détecteur, diffuseur et déplacement vertical que pour la mesure du substrat ont été utilisés. L'angle de Bragg mesuré du miroir est  $\theta_B = 0.855^\circ$ .

## **3.5.2 Résultats**

Le principal objectif des mesures de phase par la méthode des tavelures est d'obtenir des données expérimentales, qui pourraient être comparées avec les simulations obtenues avec le modèle que nous avons développé et dont les résultats sont présentés dans le chapitre 6.

La méthode par tavelures permet de mesurer la surface réfléchissante d'un miroir ou celle d'une surface réfléchissante équivalente à une multicouche. Dans notre cas, il s'agit de mesurer une surface réfléchissante équivalente dont les rayons interagissent dans une multicouche.

Nous présentons ici les résultats obtenus et nous comparons les multicouches 091116 et 091124 mais aussi, les mesures obtenues avant et après déposition de la multicouche référencée 170906. Cela nous permet d'observer l'influence du substrat.

### **Comparaison des miroirs 091116 et 091124**

La phase mesurée pour la multicouche 091116 est présentée figure (3.12). On observe que la phase du faisceau réfléchi n'est pas homogène et présente des fluctuations presque périodiques. On peut distinguer deux zones où les variations de phase sont différentes. Dans la partie supérieure de la figure (3.12), les amplitudes de phase sont les plus grandes (entre

$\pm 10 \text{ rad}$ ), et la période des fluctuations de phase dans la direction verticale est plus petite ( $0.2 \text{ mm}$  dans le plan de détection) que dans la zone inférieure de la figure, avec des amplitudes de phase plus faibles ( $\pm 5 \text{ rad}$ ) et les fluctuations de phase sont plus étalées ( $0.6 \text{ mm}$  de période) dans la direction verticale.

Il est aussi intéressant d'observer que les variations de phase dans la direction horizontale sont équivalentes sur toute la figure. Cependant, les variations de phase des profils horizontaux, pour toute la partie supérieure sont quasiment en phase, tandis que dans la partie inférieure on peut distinguer deux nouvelles zones où les variations de phase des profils horizontaux sont en opposition de phase.

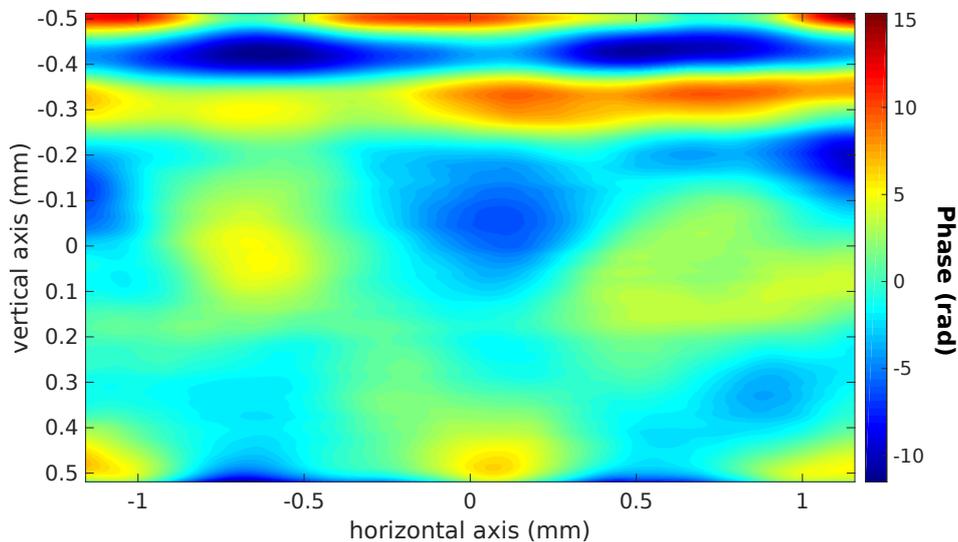


FIGURE 3.12 – Cartographie de la phase de l'onde réfléchi par la multicouche 091116 dans le plan orthogonal à la direction de propagation et à hauteur de la multicouche. Pour plus de visibilité la phase n'a pas été congrue modulo  $\equiv 2\pi$  (c'est-à-dire qu'elle n'est pas définie entre 0 et  $2\pi$ ).

Le résultat de mesure de la phase réfléchi par la multicouche 091124, montre des amplitudes de fluctuation de phase de l'ordre de  $\pm 50 \text{ rad}$  (figure (3.13)). Contrairement au résultat de la multicouche 091116, les variations de phase sont plus aléatoires, même si les profils verticaux montrent des variations périodiques, en particulier pour les profils dont l'abscisse est autour de  $-0.2 \text{ mm}$  ( $0.35 \text{ mm}$  de période). Des variations de phase dans la direction horizontale existent mais sont plus aléatoires.

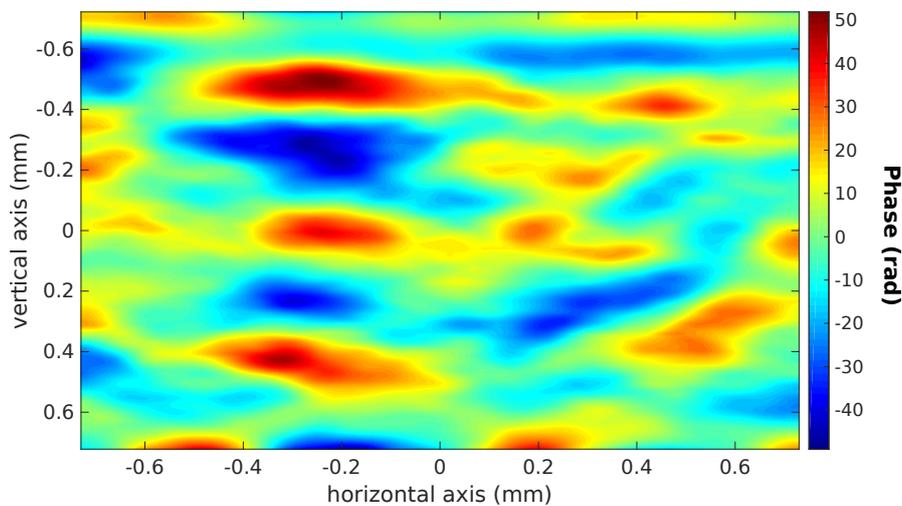


FIGURE 3.13 – Cartographie des effets de phase sur l'onde réfléchi par la multicouche 091124 dans le plan orthogonal à la direction de propagation et à hauteur de la multicouche. Pour plus de visibilité la phase n'a pas été congrue modulo  $\equiv 2\pi$  (c'est-à-dire qu'elle n'est pas définie entre 0 et  $2\pi$ ).

### Comparaison et interprétations

Du point de vue de la phase réfléchi, la principale différence entre les multicouches 091116 et 091124 est l'amplitude des fluctuations de phase. Cela est pertinent vis-à-vis de la qualité du substrat employé pour ces deux multicouches. Les différences de période d'oscillation de phase dans les différentes directions peuvent traduire des différences de fréquence spatiale de défaut dans les multicouches. Les fréquences spatiales d'oscillation de phase verticale dans le plan de détection sont du même ordre de grandeur pour les deux multicouches, mais l'angle de réflexion rasant divise environ par cent la fréquence spatiale des défauts dans les multicouches. La différence de fréquence spatiale de défaut entre les deux multicouches est alors importante.

Les différents comportements de phase que l'on observe pour la multicouche 091116, en particulier dans la zone supérieure de la figure (3.12) peuvent être liés aux défauts de hauteur (en rouge) que l'on peut visualiser sur la figure (3.14).

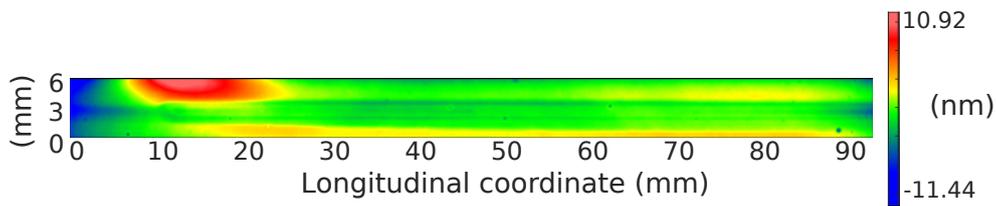


FIGURE 3.14 – Mesure interférométrie Fizeau de topographie de hauteur à la surface de la multicouche 091116 (résolution spatiale  $31.8 \times 31.8 \mu\text{m}^2$ ). La valeur de rugosité rms est 2.44 nm rms et 22.36 nm de PV.

### Comparaison avant et après dépôt

La mesure a été appliquée sur plusieurs zones du substrat, comme illustré sur la figure (3.16.c) et les résultats de phase correspondants sont visibles sur la figure (3.16). Les mesures ont été effectuées en réflexion totale (donc réflexion par la surface), et par conséquent il est possible de faire correspondre la phase à une hauteur de défaut (sur la surface réfléchissante). On observe que les motifs de phase sont différents mais possèdent des caractéristiques communes. Toutes les zones illuminées à l'exception de la zone (e), réfléchissent une phase qui fluctue principalement dans la direction verticale et avec la même période approximative de 0.2 mm dans le plan de détection. Des variations de phase dans la direction horizontale existent pour toutes les zones testées. Seule la figure (3.16.a) permet de définir clairement une période de fluctuation égale à 0.5 mm dans la direction horizontale. Les amplitudes de phase réfléchies par le substrat varient selon les surfaces illuminées, elles sont résumées dans le tableau Table 3.1.

Substrat	$\varphi_{Max-min}$ (rad)	écart type $\varphi$ (rad)
(a)	12.5	0.52
(b)	5.65	0.20
(d)	5.24	0.24
(e)	33.83	1.86
(f)	14.01	0.62

TABLE 3.1 – Tableau de valeurs obtenues pour les mesures du front d'onde réfléchi par le substrat de la multicouche 170906, dont les résultats sont illustrés figure (3.16).

De la même manière que pour le substrat nu, plusieurs surfaces de la multicouche ont été caractérisées. Les résultats sont visibles sur la figure (3.15). On observe que les variations de phase sont similaires pour

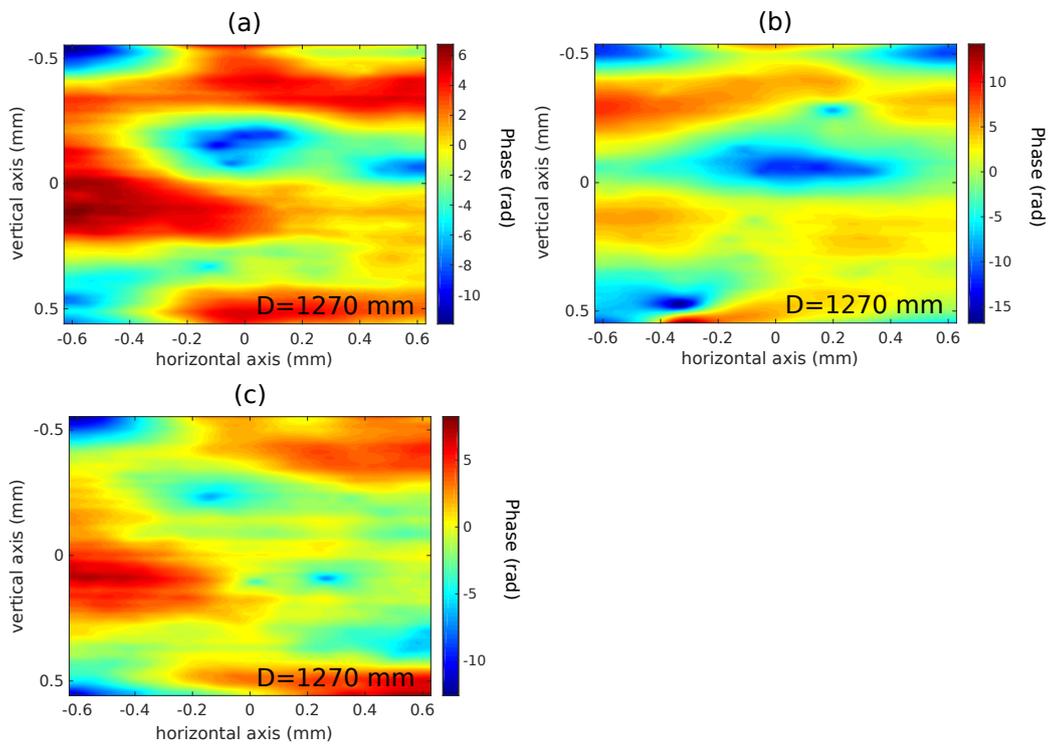


FIGURE 3.15 – (a), (b), (c), sont les résultats des différentes zones illuminées de la multicouche 170906 (IOGS-9025B) des fronts d'onde réfléchis ramenés dans le plan orthogonal à la direction de propagation et à hauteur de la multicouche. La distance de propagation lors de la mesure est de 1270 mm. Les résultats de reconstruction de phase de l'onde réfléchie ne permettent pas, dans le cas de multicouche, de reconstruire proportionnellement une hauteur. La zone illuminée en (b) correspond à la même zone du substrat illuminée sur la figure (3.16.b).

chaque surface illuminée. Deux périodes d'oscillation principale de phase apparaissent dans la direction verticale, tandis que dans la direction horizontale, on ne distingue pas de périodicité dans les variations de phase. Les amplitudes de phase sont du même ordre de grandeur selon la zone testée et sont résumées dans le tableau Table 3.2.

### Comparaisons et interprétations

En moyennant pour chaque échantillon, on obtient les valeurs suivantes (Table 3.3).

multicouche	$\varphi_{Max-min}$ (rad)	écart type $\varphi$ (rad)
(a)	18.68	0.81
(b)	31.03	0.70
(c)	20.85	0.81

TABLE 3.2 – Tableau de valeurs obtenues pour les mesures de front d'onde de l'onde réfléchi par le miroir multicouche 170906 dont les résultats sont illustrés figure (3.15).

échantillon	$\langle \varphi_{Max-min} \rangle$ (rad)	$\langle \text{écart type} \rangle \varphi$ (rad)
Substrat	13.69	0.69
Multicouche	26.05	1.03

TABLE 3.3 – Tableau de valeurs moyennes obtenues pour chaque échantillon.

Le tableau Table 3.3 montre que les déformations de phase, induites par la réflexion sur le miroir, sont globalement amplifiées avec la déposition de la multicouche. Les figures (3.16) et (3.15) ont été obtenues avec des angles d'incidence différents. Une projection de ces figures permet d'estimer que la fréquence d'oscillation verticale de la phase est équivalente avec ou sans dépôt multicouche. La comparaison des motifs des figures (3.16.b) et (3.15.b) montre que les perturbations de phase induites par le miroir ont les mêmes propriétés d'oscillation. Cependant, on distingue des fluctuations supplémentaires plus faibles et de plus grande fréquence avec la multicouche. Globalement les motifs de ces figures sont différents et confirment que la surface réfléchissante équivalente d'une multicouche est différente de la surface du substrat sur laquelle elle est déposée. Autrement dit, la modélisation de l'onde réfléchi par une multicouche doit prendre en considération le volume de la multicouche et donc la réflexion par diffraction.

### 3.5.3 Conclusion méthode des tavelures en champ proche

La comparaison entre les deux multicouches (091116 et 091124) montre que, comme attendu, les effets de phase sont plus importants et plus nombreux sur la multicouche 091124 déposée sur un substrat de qualité inférieure à celui de la multicouche 091116. Si la cartographie de la phase permet de reconstruire la topographie de hauteur d'une surface réfléchissante équivalente pour une multicouche, elle ne correspond pas rigoureusement aux défauts de hauteur dans la structure multicouche. Pour retrouver ces défauts de hauteur dans la structure multicouche, des simulations avec un

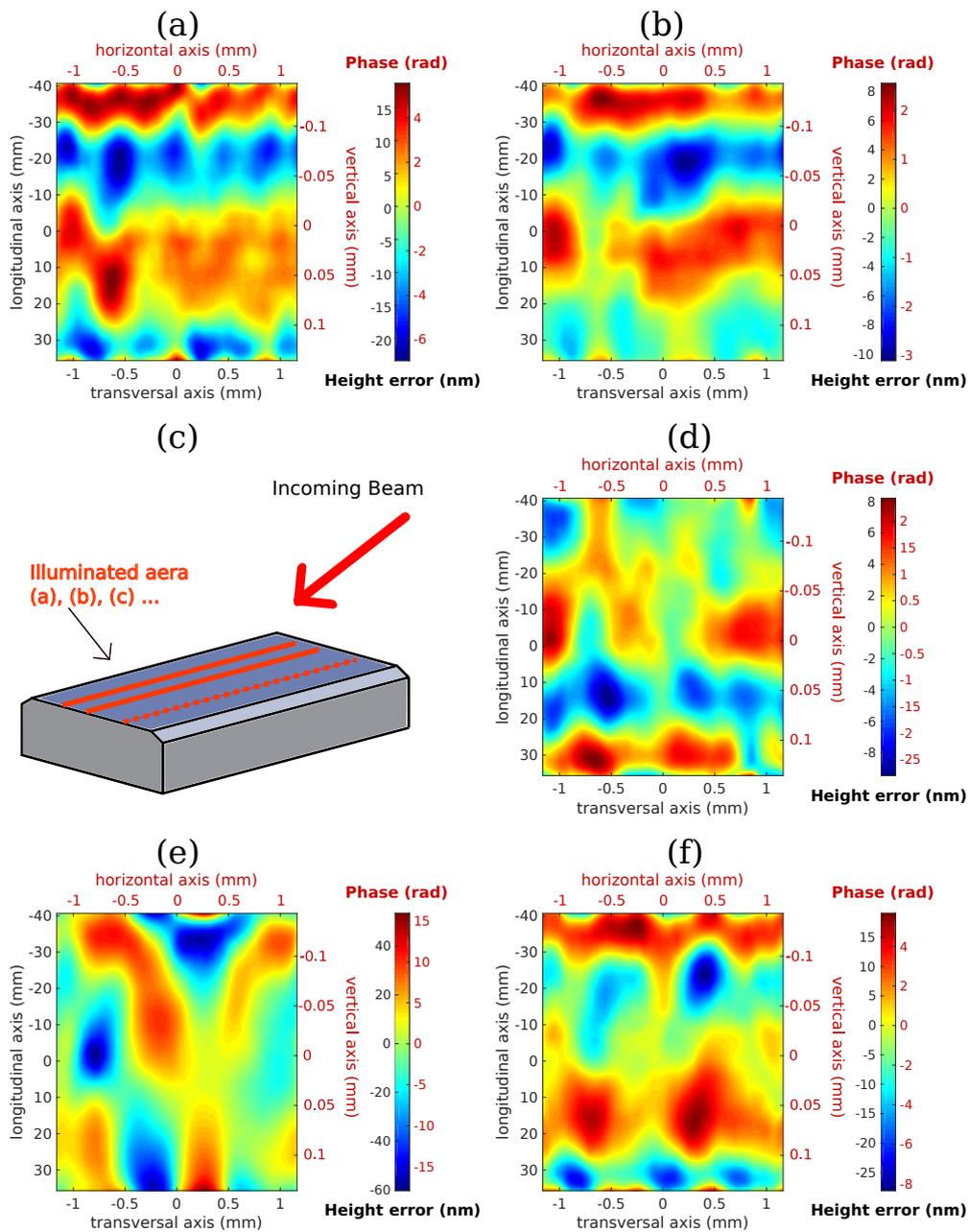


FIGURE 3.16 – (a), (b), (d), (e), (f), sont les résultats des différentes zones illuminées comme illustré en (c), respectivement à  $-5\text{ mm}$ ,  $-2.5\text{ mm}$ ,  $0\text{ mm}$ ,  $2.5\text{ mm}$  et  $5\text{ mm}$  du profil central du substrat. Les résultats de reconstruction de phase de l’onde réfléchie (échelle de couleur et coordonnées en rouge) sont donnés dans le plan orthogonal à la direction de propagation et à hauteur du centre du substrat. Pour une surface réfléchissante, la phase peut être traduite proportionnellement par une hauteur. Les résultats des hauteurs ainsi reconstruites sont projetés sur la surface du substrat (échelle de couleur et coordonnées en noir).

modèle de Takagi Taupin (TT) ont été effectuées. En appliquant des défauts de hauteur à la structure multicouche simulée, la phase de l'onde réfléchie a été obtenue. Elle a été ensuite comparée à la phase mesurée, et a permis d'ajuster les défauts de hauteur jusqu'à obtenir un résultat correspondant à l'expérience (chapitre 6).

La comparaison entre la phase obtenue par réflexion par la surface du substrat et la réflexion par la structure multicouche déposée sur ce substrat, montre le rôle important du type de réflexion par une surface ou par un volume diffractant. En effet, si nous considérons que les erreurs de hauteur dans la structure multicouche et à la surface du substrat sont identiques, on observe une forte différence entre la phase de l'onde réfléchie par le substrat (surface réfléchissante) et celle réfléchie par la multicouche (volume diffractant).

En définitive, ces mesures nous permettent de confirmer que les erreurs de hauteur du substrat ont une forte influence sur la structure multicouche. Cependant, le comportement de la multicouche ne peut pas être réduit à une surface réfléchissante et la propagation de l'onde dans son volume doit être modélisée. Nous ne pouvons pas affirmer que ces erreurs de hauteur dans la structure multicouche sont identiques à celles du substrat. La modélisation d'une multicouche permet de retrouver les motifs de phase mesurés et les erreurs de hauteur dans la multicouche et de les comparer avec le substrat.

## 3.6 Holographie

### 3.6.1 Mesures par Holographie

Pour la reconstruction holographique du faisceau réfléchi par la multicouche, les données nécessaires sont une série d'images à différentes distances de la multicouche.

Nous rappelons que le principe de reconstruction du front d'onde par la méthode holographique est basé sur l'obtention de la phase  $\varphi(x)$ , à partir de la transformée de Fourier  $\widetilde{\varphi}(\nu)$ , déterminée selon la relation (2.7). Rappelons aussi que la fonction de transfert présente des zéros qui exigent d'obtenir l'intensité réciproque  $\widetilde{I}_z$  à plusieurs distances.

Cette technique de mesure de phase trouve des applications plus spécifiques comme la Holo-tomographie. C'est une méthode de reconstruction en trois dimensions basée sur la mesure du faisceau transmis par un échantillon à différentes distances et différents angles. Le choix de distances spécifiques permet d'optimiser le nombre d'images prises à différentes distances, en vue de réaliser la reconstruction de la phase de l'onde réfléchie, nécessaire pour chaque angle. Dans notre cas de reconstruction à deux dimensions, cette optimisation n'était pas nécessaire car nous sommes limités à une seule direction (un seul angle); nous avons donc utilisé une dizaine de distances.

#### Configuration expérimentale

La multicouche 170906 a été mesurée sur la ligne de lumière BM05, avec un faisceau monochromatique de  $17\text{ keV}$  sous un angle de Bragg  $\theta_B = 14.9\text{ mrad}$  ( $0.855^\circ$ ). Le détecteur était une caméra de la marque PCO avec un champ de vue de  $1.29 \times 1.29\text{ mm}^2$  composé d'un damier de  $2048 \times 2048$  pixels de taille  $0.63 \times 0.63\ \mu\text{m}^2$ .

110 images ont été enregistrées pour des distances détecteur-multicouche comprises entre  $0.39$  et  $1.49\text{ m}$  avec un temps d'exposition de  $1\text{ s}$ . Les distances détecteur-multicouche ont été définies par l'amplitude de déplacement possible sur le diffractomètre 3 axes. Un échantillon des images du faisceau réfléchi est présenté figure (3.17).

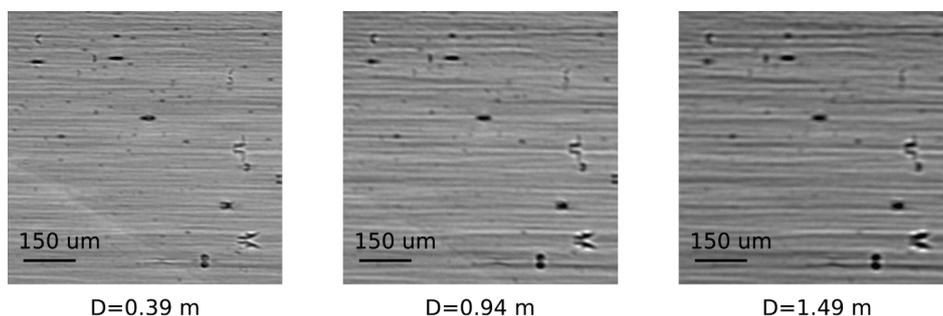


FIGURE 3.17 – Image du faisceau réfléchi par la multicouche 170906 à différentes distances de propagation.

### Traitement et analyse des données

Le traitement des données se compose des étapes de retrait du bruit du détecteur et des imperfections dans le faisceau incident. Une étape de recentrage est également nécessaire en raison des déplacements horizontaux du détecteur induits par l'instrumentation. Plusieurs analyses ont été appliquées en utilisant l'ensemble ou une partie des images obtenues. En final, l'analyse ne nécessite que 11 images, soit 10% des images accumulées lors de la campagne de mesures (car les résultats sont équivalents en fonction du nombre d'images utilisées). Cela peut s'expliquer par les très faibles changements de motif d'intensité (dans le faisceau réfléchi) lorsque la distance multicouche-détecteur change d'un centimètre.

Ces traitements ont été effectués au moyen d'un code d'analyse existant de reconstruction holo-tomographie adapté par Peter Cloetens, le responsable de la ligne ID16A de l'ESRF.

### 3.6.2 Résultats

Le résultat de reconstruction holographique est présenté dans la figure (3.18). La phase réfléchie possède une forme allongée dans la direction transverse, ce qui est cohérent avec la forme des lignes d'intensité observées, compte tenu des effets de cohérence spatiale et des observations faites §3.3.3. Nous observons aussi que les fluctuations de phase n'ont pas les mêmes fréquences spatiales que les motifs d'intensité. Les défauts à l'origine des lignes d'intensité semblent avoir des dimensions de l'ordre de plusieurs millimètres si l'on projette le résultat sur la surface de la multicouche. Ce résultat pourra être comparé avec la reconstruction de phase par la méthode des tavelures en champ proche.

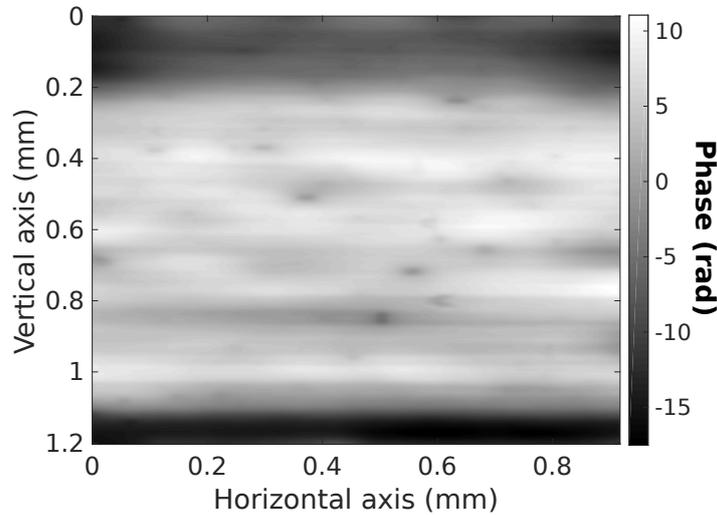


FIGURE 3.18 – Résultat de reconstruction holographique de la phase de l’onde réfléchie dans le plan perpendiculaire au faisceau à la sortie de la multicouche 170906.

Nous n’avons pas pu répéter cette analyse avec d’autres jeux de données correspondants à d’autres multicouches en raison du manque de temps. Néanmoins, ce résultat démontre qu’il est possible de reconstruire la phase de l’onde réfléchie par une multicouche et que la dimension des défauts de la multicouche, responsables des motifs d’intensité dans le faisceau réfléchi, est de plusieurs millimètres (dans le plan de la multicouche).

### 3.7 Conclusion des mesures de caractérisation

Les campagnes de mesures avaient pour objectif principal de caractériser les multicouches et d’obtenir des résultats expérimentaux permettant de valider le modèle numérique que nous avons développé. La caractérisation des multicouches devait premièrement, permettre de comprendre ou valider les hypothèses de modélisation. Des images du faisceau réfléchi à différentes distances ont été enregistrées pour être comparées avec les simulations. Des expériences simples de rotation de miroir ont montré que la forme géométrique des lignes d’intensité est liée à la cohérence de la source et aux effets de projection de l’angle rasant et non pas spécifiquement à la forme géométrique des défauts dans la multicouche. Les caractérisations des défauts dans les multicouches devaient aussi per-

mettre de mesurer les défauts de hauteur de la structure multicouche et de fournir des cartographies de ces défauts qui seront exploitées dans les simulations du chapitre 6. Pour cela les méthodes d'imagerie et de reconstruction de phase ont été appliquées.

La RCI et l'imagerie  $\theta/2\theta$  ont été appliquées pour la première fois aux multicouches. Les résultats de RCI ont montré que les erreurs de pente de la structure multicouche peuvent être obtenues. Il est cependant difficile d'obtenir une résolution spatiale suffisante avec les multicouches pour étudier le problème des lignes d'intensité. L'imagerie  $\theta/2\theta$  permet d'obtenir une cartographie des écarts de période locale. Ces écarts de période n'avaient pas été envisagés dans le modèle développé. Les résultats montrent que ces écarts de période ne sont pas négligeables dans les effets de phase produits dans la réflexion de la structure multicouche, ce qui peut remettre en question la correspondance entre les erreurs de hauteur à la surface du substrat et à la surface de la multicouche.

Les mesures de phase avec les tavelures en champ proche ont permis de reconstruire la phase de l'onde réfléchie, à la hauteur de la multicouche (sans propagation). Elles ont permis de confirmer l'influence du substrat sur la structure multicouche, mais aussi l'importance de la réflexion (diffraction) par un volume. De plus, ces variations de phase seront plus faciles à utiliser pour la comparaison avec les simulations, car comparer les motifs d'intensité exige de propager les résultats de simulation en considérant plusieurs effets comme la cohérence partielle de la source et les propriétés du détecteur. La méthode de Holographie a été tentée pour explorer une méthode complémentaire à la reconstruction de phase avec les Tavelures en champ proche. Elle montre des résultats intéressants qu'il faudra confirmer dans le futur avec d'autres multicouches et qu'il faut comparer avec les résultats de Tavelures en champ proche.



## **Chapitre 4**

# **Modélisation numérique des multicouches par l'approche Takagi Taupin**



*Couches géologiques dans le massif du Vercors*

## 4.1 Introduction

Nous avons développé, dans les chapitres 2 et 3, les aspects expérimentaux nécessaires, pour tenter de caractériser les défauts à l'origine des lignes d'intensité dans le but de modéliser la réflexion par une multicouche et d'y implémenter les défauts à l'origine des lignes d'intensité. Le défaut que nous avons considéré était, l'écart de hauteur de la structure multicouche, car simple et intuitif. Pour cela, nous avons utilisé un modèle de multicouche parfaite, destiné initialement à simuler des multicouches elliptiques avec les équations de Takagi-Taupin [105, 106]. Dans ce chapitre, nous développerons la solution des équations de Takagi Taupin. Ensuite, les méthodes de résolution numérique seront expliquées et commentées ainsi que les limites et les approximations du modèle.

Il existe différentes possibilités pour modéliser la propagation des ondes dans un matériau. Parmi elles on trouve (figure(4.1.A)) l'approximation de faible interaction du champ incident avec la matière, dite approximation de Born ou cinématique. Pour prendre en compte les réflexions multiples la technique de Tracé de Rayons (TdR) (figure(4.1.B)) est utile [107, 108, 109, 110, 111, 112]. Pour une description plus complète du phénomène de diffraction, la théorie dynamique (figure(4.1.C)) est mise en œuvre, afin de considérer le couplage des ondes dans le volume de diffraction.

Les équations de Takagi-Taupin (TT) sont une théorie dynamique, basée sur l'approximation à deux ondes, connue pour le cas des cristaux [113]. Cette théorie est largement utilisée pour modéliser les cristaux fortement perturbés [85, 113, 114]. C'est aussi une des seules théories qui

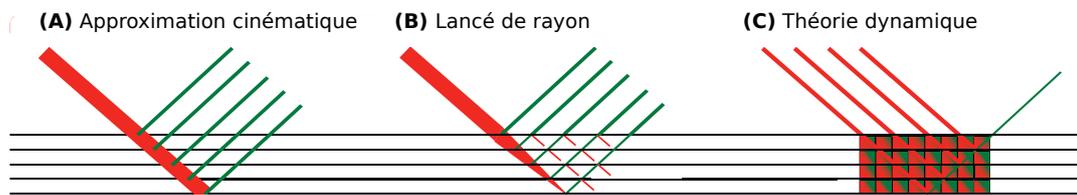


FIGURE 4.1 – Principe de diffraction par une structure multicouche : (A) Approximation cinématique, chaque couche contribue à la réflectivité globale, si l'angle d'incidence est supérieur à l'angle critique. (B) La technique de lancé (ou tracé) de rayon est utilisée pour considérer les diffractions multiples. (C) La théorie dynamique considère les diffractions multiples par le couplage des champs d'ondes.

permet de considérer des déformations dans le plan de la multicouche (direction parallèle à la surface de la multicouche). L'adaptation au cas des miroirs multicouches et la méthode de résolution numérique seront ensuite décrites. Dans l'annexe A, la solution analytique aux équations de Takagi-Taupin est développée pour le cas parfait à partir des équations générales.

*Description du cas parfait* : Dans ce chapitre, le cas parfait ou multicouche plate parfaite correspond à une multicouche dont la structure périodique est parfaite et les couches parfaitement parallèles. Autrement dit, la structure multicouche ne contient aucun défaut.

## 4.2 Équations de Takagi-Taupin

### 4.2.1 Description du choix de la théorie de Takagi-Taupin

Le modèle théorique de Takagi-Taupin choisi pour simuler les miroirs multicouches est bien connu pour la diffraction des cristaux. Il est basé, sur une approximation à deux ondes, où  $\psi_0$  est l'onde incidente et où  $\psi_1$  l'onde diffractée. Les termes  $\psi_0$  et  $\psi_1$  représentent les ondes qui interagissent avec la structure multicouche. Cette structure est définie par les coefficients de Fourier  $\chi_0$ ,  $\chi_1$  et  $\chi_{-1}$  et sa période. La période de la structure multicouche correspond à l'épaisseur d'une bicouche et est analogue au paramètre de maille d'un cristal.

Approximation cinématique : La première des approximations consiste,

à considérer indépendamment toutes les interfaces. La réflectivité résultante est alors la somme des réflectivités, pour chacune des interfaces. Si l'on considère les interférences possibles entre elles, alors ce sont les amplitudes qui sont additionnées. La première approximation de Born consiste, à négliger les diffractions multiples et peut s'appliquer pour les multicouches [115].

Tracé de rayon : La structure périodique du miroir multicouche produit des réflexions à chaque interface. Une méthode ('Phase ray-tracing') plus complète, prend en compte les différences de chemin optique [107, 108, 109, 110, 111, 112].

Théorie dynamique de diffraction des rayons X : Le couplage des ondes permet de créer un champ d'ondes, qui peut interagir avec un volume. Ainsi, dans un volume continu, qui reproduit une structure diffractante, les ondes seront couplées entre elles en tous points de l'espace. La théorie dynamique de diffraction des rayons X a été principalement établie, par les travaux de Charles Galton Darwin [116], Max von Laue, Paul Peter Ewald et d'autres comme Norio Kato [117]; des notes historiques et autres références sont disponibles [118, 119]. Des revues récentes sont listées en [120]. Pour une discussion exhaustive des différentes approximations se référer à [121].

Approximation à deux ondes : Le problème est réduit à seulement deux ondes. La première est appelée onde entrante et la seconde est appelée onde réfléchie ou diffractée.

Takagi Taupin : Les hypothèses de simplification de la théorie de Takagi Taupin sont l'approximation à deux ondes et la description de la structure diffractante périodique, par sa série de Fourier, limitée aux coefficients complexes d'ordres inférieurs ou égaux à un. C'est-à-dire que la structure périodique (peu importe sa forme), est décrite comme une fonction sinusoïdale. Ces simplifications permettent l'introduction simple et naturelle de perturbation des mailles.

La théorie TT a été développée par Satio Takagi et Daniel Taupin dans les années 1960 [113, 114]. Depuis, des implémentations numériques [122, 123] ont été développées pour les rayons X, pour étudier les dislocations et autres structures présentes dans les cristaux.

Méthode de résolution : Les solutions analytiques aux équations de TT

existent seulement, pour des géométries simples. La plupart des simulations numériques utilisent, la méthode de résolution des différences finies [122, 123], laquelle consiste en l'intégration point par point, des équations différentielles sur une matrice. Dans la section suivante, les équations fondamentales de la théorie de Takagi-Taupin seront détaillées.

*Le modèle modifié pour cette thèse est basé sur un modèle existant développé par Markus Osterhoff [105, 106], pour des géométries elliptiques. Ce modèle étant lui-même établi selon [124].*

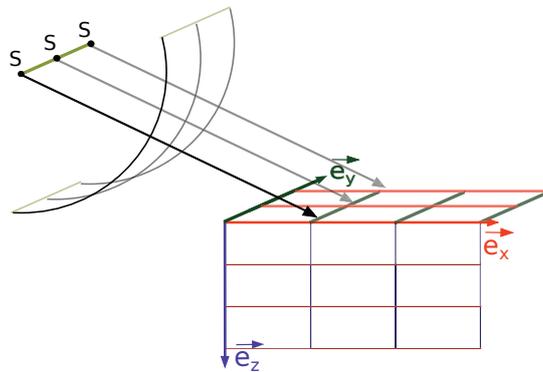


FIGURE 4.2 – *Système de coordonnées du problème. La source ponctuelle et cohérente devient une source rectiligne quand le cas à trois dimensions est étudié, l'onde sphérique émise devient alors cylindrique, selon le principe de Huygens-Fresnel.*

## 4.2.2 Équations fondamentales

Dans cette partie, les équations TT sont dérivées pour le cas à deux dimensions ( $\vec{e}_x, \vec{e}_z$ ). La multicouche est considérée comme infiniment étendue dans la direction orthogonale à la normale de la surface. La source est considérée comme ponctuelle, émettant une onde sphérique parfaitement cohérente.

Les équations seront écrites dans le système de coordonnées illustré sur la figure (4.2). Le passage à trois dimensions peut se faire par des calculs à deux dimensions, indépendants pour plusieurs tranches, car les effets transverses sont négligeables. La source ponctuelle devient alors une source 'ligne,' émettant une onde cylindrique. Les effets de polarisation sont négligés pour ne rester que dans le cadre de la théorie scalaire. L'équation de Helmholtz scalaire est l'équation fondamentale qui décrit

l'évolution d'un champ électromagnétique  $\psi$  soit :

$$\nabla^2\psi + k^2(1 + \chi)\psi = 0 \quad (4.1)$$

où  $k = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  est la longueur d'onde dans le vide et  $\chi(x, z)$  la fonction de susceptibilité électromagnétique de la structure multicouche. La susceptibilité électromagnétique dépend de l'indice de réfraction des matériaux  $n$  et de l'angle critique  $\theta_c$  (pour l'indice moyen).

$$1 + \chi = \underline{n}^2 = |(1 - \delta + i\beta)|^2 \approx 1 - 2\delta = 1 - \theta_c^2$$

L'approximation à deux ondes considère que le champ d'onde  $\psi(\vec{r})$  est une superposition des deux ondes planes modulées de vecteur d'onde  $\vec{k}_h \equiv \vec{k}_0 + \vec{h}$  où  $\vec{h}$  est le vecteur diffraction,  $\vec{k}_0$  le vecteur d'onde incidente et  $\vec{k}_h$  le vecteur d'onde diffractée. Alors la fonction d'onde s'écrit :

$$\begin{aligned} \psi(\vec{r}) &= \psi_0(\vec{r}) + \psi_h(\vec{r}) \\ &= E_0(r)e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}} + E_h(r)e^{i\vec{k}_h \cdot \vec{r}} \end{aligned}$$

Les ondes se propagent dans la structure multicouche, ce qui se traduit par l'action de la susceptibilité électromagnétique  $\chi(x, z)$ . La structure de la multicouche étant périodique, la série de Fourier de la susceptibilité  $\chi$  est utilisée. De plus, dans l'approximation à deux ondes, seuls les termes d'ordre zéro et le fondamental sont pris en compte.

$$\chi(\vec{r}) = \chi_0 + \sum_h \chi_h e^{i\vec{h} \cdot (\vec{r} - \vec{e})} \approx \chi_0 + \chi_{\bar{1}} e^{-i\vec{h} \cdot (\vec{r} - \vec{e})} + \chi_1 e^{i\vec{h} \cdot (\vec{r} - \vec{e})} \quad (4.2)$$

Les déplacements verticaux de la structure multicouche sont matérialisés par  $\vec{e}$ . Ces déplacements verticaux permettent de considérer les défauts de hauteur qui sont supposés responsables des lignes d'intensité. Le terme  $\vec{e}$  est détaillé dans le chapitre suivant (chapitre 5, §5.2). Dans le produit  $\chi\psi$  apparaissent ainsi  $2 \times 3 = 6$  termes. Cependant, les termes  $e^{i(\vec{k}_0 - \vec{h}) \cdot \vec{r}}$  et  $e^{i(\vec{k}_h + \vec{h}) \cdot \vec{r}}$  ne sont pas considérés, car différents des ondes incidente et diffractée et donc en dehors de l'approximation à deux ondes. Le développement de ces approximations donne :

$$\begin{aligned} \psi\chi &= \left( E_0(r) e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}} + E_h(r) e^{i\vec{k}_h \cdot \vec{r}} \right) \left( \chi_0 + \chi_{\bar{1}} e^{-i\vec{h} \cdot (\vec{r} - \vec{e})} + \chi_1 e^{i\vec{h} \cdot (\vec{r} - \vec{e})} \right) \\ &= E_0(r) \left[ \chi_0 e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}} + \chi_1 e^{i(\vec{k}_0 + \vec{h}) \cdot \vec{r}} e^{-i\vec{h} \cdot \vec{e}} + \chi_{\bar{1}} e^{i(\vec{k}_0 - \vec{h}) \cdot \vec{r}} e^{i\vec{h} \cdot \vec{e}} \right] \\ &\quad + E_h(r) \left[ \chi_0 e^{i\vec{k}_h \cdot \vec{r}} + \chi_1 e^{i(\vec{k}_h + \vec{h}) \cdot \vec{r}} e^{-i\vec{h} \cdot \vec{e}} + \chi_{\bar{1}} e^{i(\vec{k}_h - \vec{h}) \cdot \vec{r}} e^{i\vec{h} \cdot \vec{e}} \right] \\ &= \left[ E_0(r)\chi_0 + E_h(r)\chi_{\bar{1}} e^{i\vec{h} \cdot \vec{e}} \right] e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}} + \left[ E_h(r)\chi_0 + E_0(r)\chi_1 e^{-i\vec{h} \cdot \vec{e}} \right] e^{i\vec{k}_h \cdot \vec{r}} \end{aligned}$$

On utilise pour le Laplacien la formule :

$$\nabla^2(E P) = E \nabla^2 P + 2 \vec{\nabla} E \cdot \vec{\nabla} P + P \nabla^2 E$$

Les termes  $\nabla^2 E_{0,h}$  sont négligés car les enveloppes sont lentement variables en comparaison avec les exponentielles  $e^{i \vec{k}_{0,h} \cdot \vec{r}}$  ce qui permet d'obtenir :

$$\nabla^2 \psi \simeq \left( 2i \vec{k}_0 \cdot \vec{\nabla} E_0 - k_0^2 E_0 \right) e^{i \vec{k}_0 \cdot \vec{r}} + \left( 2i \vec{k}_h \cdot \vec{\nabla} E_h - k_h^2 E_h \right) e^{i \vec{k}_h \cdot \vec{r}}$$

Une somme de type  $f_0 e^{i \vec{k}_0 \cdot \vec{r}} + f_h e^{i \vec{k}_h \cdot \vec{r}}$  ne s'annule partout que si  $f_0 = f_h = 0$ . D'où la décomposition en deux équations différentielles couplées.

$$\begin{cases} 2 \vec{k}_0 \cdot \vec{\nabla} E_0 = i \left[ k^2 (1 + \chi_0) - k_0^2 \right] E_0 + i k^2 \chi_{\bar{1}} E_h e^{i \vec{h} \cdot \vec{e}} \\ 2 \vec{k}_h \cdot \vec{\nabla} E_h = i \left[ k^2 (1 + \chi_0) - k_h^2 \right] E_h + i k^2 \chi_1 E_0 e^{-i \vec{h} \cdot \vec{e}} \end{cases} \quad (4.3)$$

Supposons que les vecteurs d'onde  $\vec{k}_0$  et  $\vec{k}_h$  soient tels que  $\vec{k}_0$  soit fixé et que  $\vec{k}_0^2 = |\vec{k}|^2$  mais que,  $\vec{k}_h$  varie avec le vecteur de diffraction  $\vec{h}$  tel que  $\vec{k}_h = \vec{k}_0 + \vec{h}$  et que  $\vec{k}_h^2 + \xi = |\vec{k}|^2$ . Alors le système d'équations différentielles devient :

$$\begin{cases} (\alpha_0 \partial_x + \beta_0 \partial_z) E_0 = i \left( u_0 E_0 + u_{\bar{1}} E_h e^{i \vec{h} \cdot \vec{e}} \right) \\ (\alpha_h \partial_x - \beta_h \partial_z) E_h = i \left( \left( u_0 + \frac{\xi}{2k} \right) E_h + u_1 E_0 e^{-i \vec{h} \cdot \vec{e}} \right) \end{cases} \quad (4.4)$$

Avec  $u_i = k \chi_i / 2$ , ainsi que  $\alpha_{0,h} = \vec{k}_{0,h} \cdot \vec{e}_x$  et  $\beta_{0,h} = \vec{k}_{0,h} \cdot \vec{e}_z$ .

Ainsi, les ondes incidente  $\psi_0$  et diffractée  $\psi_h$  qui se propagent dans la structure multicouche sont dépendantes des termes de couplage  $u_0, u_1, u_{\bar{1}}$ . Le terme  $u_0$ , lié à la susceptibilité moyenne de la structure multicouche  $\chi_0$  décrit le comportement des deux ondes, dans un milieu homogène, et par conséquent, produit des effets de phase et d'absorption. Les termes  $u_1$  et  $u_{\bar{1}}$ , sont les termes de couplage, qui échangent l'énergie entre  $\psi_0$  et  $\psi_h$ .

Les termes de couplage dépendent des coefficients de Fourier de la fonction de susceptibilité électromagnétique  $\chi(z) = n^2(z) - 1$ . Les valeurs numériques des termes  $\chi_0, \chi_1, \chi_{\bar{1}}$ , pour une structure multicouche périodique parfaite de  $W/B_4C$  sont calculés à partir des valeurs des indices optiques complexes qui changent avec l'énergie du faisceau. A 15 keV les susceptibilités électromagnétiques des matériaux sont :  $\chi_W = -3.9 \cdot 10^{-5} + i 6.62 \cdot 10^{-6}$ ,  $\chi_{B_4C} = -6.46 \cdot 10^{-6} + i 2.38 \cdot 10^{-9}$ .

$$\begin{aligned}
\chi_0 &= \langle n^2(z) - 1 \rangle = -2.27 \cdot 10^{-5} + i 1.66 \cdot 10^{-6} \\
\chi_1 &= \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} (n^2(z) - 1) e^{-i\frac{2\pi}{T}z} dz = -4.21 \cdot 10^{-6} - i 2.07 \cdot 10^{-5} \\
\chi_{\bar{1}} &= \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} (n^2(z) - 1) e^{i\frac{2\pi}{T}z} dz = 4.21 \cdot 10^{-6} + i 2.07 \cdot 10^{-5}
\end{aligned} \tag{4.5}$$

## 4.3 Réfraction dans l'équation de Bragg

### 4.3.1 Effet de réfraction

Jusqu'à présent, le vecteur d'onde incidente  $\vec{k}_0$  est défini selon la position de la source. Cependant, la réfraction modifie la direction du vecteur  $\vec{k}_0$  dans la structure multicouche, comme le montre la figure 4.3. La différence de longueur du chemin optique induite par la réfraction modifie les conditions d'interférences constructives (loi de Bragg). Pour rendre compte de cette réfraction, un terme correctif (dépendant de l'angle d'incidence et de l'énergie) doit donc être considéré. La relation de Bragg permet de donner une équivalence entre l'effet d'une rotation angulaire produit par la réfraction et un changement d'épaisseur de bicouche  $\Lambda$ . Dans le modèle, le paramètre  $\Lambda$  de la structure multicouche est nativement optimisé pour satisfaire les conditions de Bragg.

Ce modèle (que nous avons utilisé pour ce projet de thèse) avait pour objectif de déterminer les épaisseurs des couches (optimisation locale des épaisseurs) pour un miroir multicouche de forme elliptique. Cela justifie le choix d'ajuster l'épaisseur de bicouche (avec un terme correctif) plutôt que de modifier les directions de propagation (effet de réfraction) dans la multicouche.

Bien que l'objectif de ce travail de thèse soit différent, ce choix reste cohérent et ne change pas la méthode d'implémentation des défauts de hauteur. Le terme correctif à appliquer consiste à modifier l'épaisseur réelle de la multicouche, pour obtenir une longueur de chemin optique sans réfraction, équivalente au cas réel.

### 4.3.2 Modification des conditions de Bragg

L'équation de Bragg géométrique donne la correspondance entre une épaisseur de bicouche  $\Lambda^B$ , la longueur d'onde  $\lambda$  et l'angle d'incidence

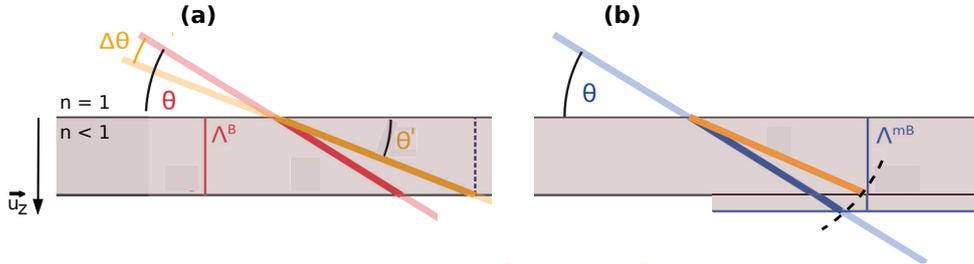


FIGURE 4.3 – Illustration de la rotation équivalente, induite par la réfraction (a). En rouge, la direction du faisceau incident et en orange, la direction du faisceau réfracté. (b) Le faisceau incident bleu n'est pas réfracté et l'épaisseur  $\Lambda^{mB}$  de la bicouche est modifiée pour obtenir la même longueur de chemin optique que dans le cas réel (faisceau réfracté orange dans la bicouche). Cela permet de tenir compte des effets de réfraction, sans modifier le vecteur d'onde incident (dont l'angle d'incidence).

rasante  $\theta$ , sans tenir compte de l'indice optique moyen.

$$\Lambda^B = \frac{\lambda}{2 \sin \theta} \quad (4.6)$$

Ainsi, en mesurant l'angle de Bragg  $\theta$  d'une multicouche pour une longueur d'onde donnée  $\lambda$ , l'épaisseur d'une bicouche  $\Lambda^B$  peut être déterminée. Pour rendre compte de l'indice optique moyen, il suffit de calculer l'angle de réfraction par la loi de Snell-Descartes, ce qui permet d'écrire l'équation (4.8).

$$\begin{aligned} 1 &= \sin^2 \theta' + \cos^2 \theta' = \sin^2 \theta' + \cos^2 \theta / n^2 \\ n^2 \sin^2 \theta' &= n^2 - \cos^2 \theta \end{aligned} \quad (4.7)$$

En utilisant l'équation (4.8), il est donc possible d'obtenir l'épaisseur de la bicouche plus précisément, en considérant l'indice optique moyen  $n = \Gamma n_1 + (1 - \Gamma)n_2$ , où  $\Gamma$  est le rapport de l'épaisseur la couche de haut indice sur la somme des épaisseurs de la bicouche. La condition de Bragg est modifiée par la réfraction dans la structure multicouche, comme illustré sur la figure (4.3).

$$\Lambda^{mB} = \frac{\lambda}{2 \sqrt{n^2 - \cos^2 \theta}} \quad (4.8)$$

A titre d'exemple, pour une multicouche composée de couches de tungstène (W) et de carbure de bore ( $B_4C$ ), de même épaisseur, l'indice

optique moyen pour une longueur d'onde de 0.1 nm est :

$$\begin{aligned}
 \langle n \rangle &= (n_W + n_{B_4C})/2 \\
 &= (1 - 1.95 \cdot 10^{-5} + i 3.31 \cdot 10^{-6} + 1 - 3.23 \cdot 10^{-6} + i 1.19 \cdot 10^{-9})/2 \\
 &= 1 - 1.14 \cdot 10^{-5} + i 1.65 \cdot 10^{-6} \\
 \langle \delta \rangle &\approx 1.14 \cdot 10^{-5}
 \end{aligned}$$

Pour un faisceau incident se propageant dans le vide avec un angle rasant de valeur  $\theta = 10\text{mrad}$ , l'épaisseur des bicouches selon la loi de Bragg dans le vide et dans la multicouche sont :

$$\Lambda^B = \frac{\lambda}{2\sin\theta} \approx 5\text{nm}, \quad \Lambda^{mB} = \frac{\lambda}{2\sqrt{n^2 - \cos^2\theta}} \approx 5.688\text{nm}$$

Dans l'exemple ci-dessus la correction de réfraction conduit à une valeur de période environ 14 % plus importante que celle obtenue par la loi de Bragg.

## 4.4 Résolution numérique des équations de Takagi-Taupin

Dans la partie précédente, le système d'équations différentielles (4.4) a été établi selon la théorie de Takagi-Taupin pour une multicouche, en prenant en considération la réfraction (figure 4.3). Il existe des solutions analytiques aux équations de Takagi-Taupin mais seulement pour des cas géométriques simples (voir annexe A, §A.2). Dans le cas de géométrie complexe, seule une solution numérique peut être envisagée. Ainsi, il est nécessaire d'établir une méthode numérique de résolution des équations (4.4) pour espérer produire des simulations.

Les paragraphes suivants ont pour objet de présenter la méthode de résolution numérique des équations de Takagi-Taupin pour une multicouche plate et parfaite.

En premier lieu, les conditions aux limites (initiales) seront établies par la situation physique du problème. Ensuite, la méthode numérique d'intégration des équations différentielles sera présentée. Enfin, les limites et les approximations de la méthode numérique seront commentées.

### 4.4.1 Conditions aux limites

La solution des équations de Takagi-Taupin exige d'établir les conditions aux limites. Celles-ci sont définies par les conditions d'illumination

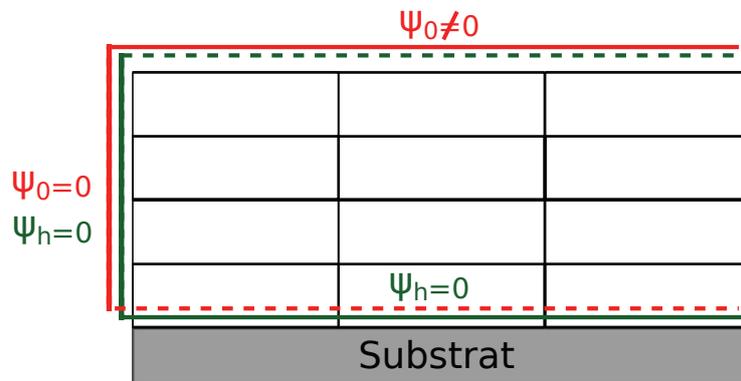


FIGURE 4.4 – Conditions aux limites pour les ondes incidente et diffractée. Les lignes colorées correspondent aux conditions connues, les lignes en pointillés sont à déterminer par la simulation.

pour chaque onde (incidente et diffractée) sur les quatre limites de la multicouche, à deux dimensions. Seulement la moitié des huit conditions limites étant connues, les autres doivent être calculées par la simulation. Les conditions aux limites illustrées, figure (4.4) sont :

#### Conditions connues

- $\psi_0, \psi_h(\text{gauche}) = 0$
- $\psi_h(\text{bas}) = 0$
- $\psi_0(\text{haut}) =$  l'onde incidente

#### Conditions calculées

- $\psi_h(\text{haut}) =$  l'onde réfléchie
- $\psi_0(\text{bas}) =$  l'onde transmise
- $\psi_0, \psi_h(\text{droit}) =$  pas d'intérêt

### 4.4.2 Méthode de résolution numérique

Pour résoudre le système d'équations différentielles, il existe principalement deux méthodes distinctes.

La Méthode des Différences Finies consiste en une approximation par différence finie de la dérivée. La convergence de cette méthode est obtenue en faisant converger la dérivée discrète vers la dérivée réelle, c'est-à-dire en augmentant le nombre de points de discrétisation et donc en rapprochant ces points. Ainsi, l'espacement entre les points (dans les deux directions  $\vec{u}_x, \vec{u}_z$ ) doit être suffisamment petit pour obtenir un résultat précis, mais pas trop petit, car les erreurs numériques seraient dominantes. Cette méthode a été utilisée pour résoudre les équations de Takagi-Taupin [113, 125, 114, 119, 120, 126]. Pour une multicouche avec un faible gradient dans la direction  $\vec{u}_z$ , un espacement de l'ordre de  $\Lambda^B/2$  est suffisant, mais il

sera établi plus tard qu'un échantillonnage plus important sera nécessaire, pour l'introduction de défaut dans le modèle.

### Application de la Méthode des Différences Finies

Le système d'équations différentielles aux dérivées partielles (4.4) pour une multicouche s'écrit au point de coordonnées  $(x_n, z_n)$  :

$$\begin{cases} (\alpha \partial_x + \beta \partial_z) \psi_0(x_n, z_n) = i \left( u_0 \psi_0(x_n, z_n) + u_{\bar{1}} \psi_h(x_n, z_n) K(x_n) \right) \\ (\alpha \partial_x - \beta \partial_z) \psi_h(x_n, z_n) = i \left( u_1 \psi_0(x_n, z_n) K(x_n) + \left( u_0 + \frac{\xi}{2k} \right) \psi_h(x_n, z_n) \right) \end{cases} \quad (4.9)$$

avec  $e^{-i\vec{h} \cdot \vec{\epsilon}(x_n, z_n)} = K(x_n)$ .

Le champ de déplacement  $\vec{\epsilon}$  est nul pour une structure parfaite, mais nous avons à étudier une structure déformée.

Pour la méthode des différences finies, l'équivalence linéaire aux dérivées partielles suivantes est utilisée.

$$\partial_X \psi(X_n) = \frac{\psi(X_{n+1}) - \psi(X_n)}{\Delta_X} \simeq \frac{\psi(X_n) - \psi(X_{n-1})}{\Delta_X}$$

Où  $X$  est une variable discrète,  $n$  la  $n$ -ième valeur de  $X$  et  $\Delta_X = X_{n+1} - X_n = X_n - X_{n-1}$

Rigoureusement, la dérivée discrète s'écrit comme la moyenne des dérivées à gauche et à droite qui, dans le cas d'une fonction  $\psi(x)$  continue, sont égales.

Les dérivées discrètes à gauche et à droite sont considérées égales car les variations des enveloppes sont faibles (voir §4.2.2 Équations fondamentales).

Seul un choix spécifique des dérivées discrètes permet de résoudre ces équations (4.9) pour l'ensemble des points qui composent la multicouche pour  $\psi_0$  et  $\psi_h$  au point de coordonnées  $M(x_{n-1}, z_n)$ .

$$\begin{cases} \left( \alpha \frac{\psi_0(x_n, z_n) - \psi_0(x_{n-1}, z_n)}{\Delta_x} + \beta \frac{\psi_0(x_{n-1}, z_n) - \psi_0(x_{n-1}, z_{n-1})}{\Delta_z} \right) = i \left( u_0 \psi_0(x_{n-1}, z_n) + u_{\bar{1}} \psi_h(x_{n-1}, z_n) K(x_n) \right) \\ \left( \alpha \frac{\psi_h(x_n, z_n) - \psi_h(x_{n-1}, z_n)}{\Delta_x} - \beta \frac{\psi_h(x_{n-1}, z_{n+1}) - \psi_h(x_{n-1}, z_n)}{\Delta_z} \right) = i \left( u_1 \psi_0(x_{n-1}, z_n) K(x_n) + \left( u_0 + \frac{\xi}{2k} \right) \psi_h(x_{n-1}, z_n) \right) \end{cases}$$

$$\begin{aligned} \frac{\psi_0(x_n, z_n)}{\Delta_x} &= \psi_0(x_{n-1}, z_n) \left( \frac{\alpha}{\Delta_x} - \frac{\beta}{\Delta_z} + i u_0 \right) + \beta \frac{\psi_0(x_{n-1}, z_{n-1})}{\Delta_z} + i u_{\bar{1}} \psi_h(x_{n-1}, z_n) K(x_n) \\ \frac{\psi_h(x_n, z_n)}{\Delta_x} &= \psi_h(x_{n-1}, z_n) \left( \frac{\alpha}{\Delta_x} - \frac{\beta}{\Delta_z} + i \left( u_0 + \frac{\xi}{2k} \right) \right) - \beta \frac{\psi_h(x_{n-1}, z_{n+1})}{\Delta_z} + i u_1 \psi_0(x_{n-1}, z_n) K(x_n) \end{aligned}$$

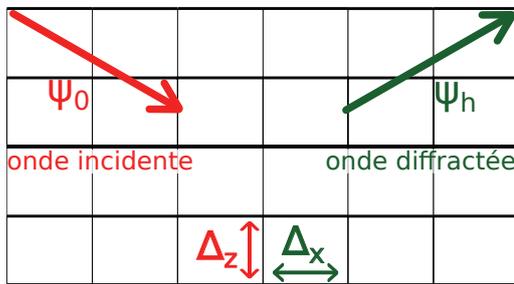
Le choix des écritures des dérivées partielles permet, comme illustré sur la figure (4.5), d'obtenir  $\psi_0(x_n, z_n)$  et  $\psi_h(x_n, z_n)$ , si les valeurs de  $\psi_0$  et  $\psi_h$  sont connues en trois points. Selon les conditions aux limites connues de la grille de calcul, figure (4.5.a), les pochoirs de la figure (4.5.b) sont les seuls permettant de calculer les ondes incidente et diffractée à partir des valeurs connues, données par les conditions aux limites.

- $\psi_0(x = 0, z) = 0$
- $\psi_0(x, z = 0) = \text{onde incidente}$
- $\psi_h(x = 0, z) = 0$
- $\psi_h(x, z = \infty) = 0$

remarque : la notation  $z = \infty$  signifie pour  $z$  à l'infini, lorsque la multicouche est d'épaisseur infinie, ou bien  $z$  est égal à l'épaisseur de la multicouche, si elle a une épaisseur finie.

remarque : Dans le cas d'une géométrie de type Laue, les conditions aux limites sont différentes et le choix d'écriture des dérivées discrètes selon la direction  $\vec{u}_z$  est différente.

**(a)** grille de calcul numérique



**(b)**

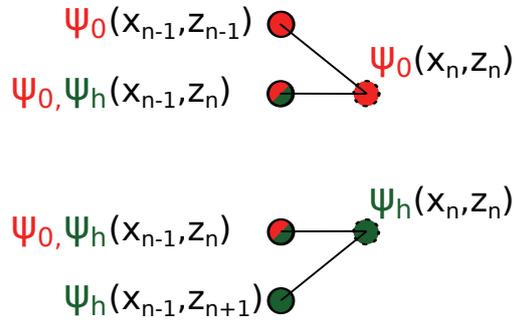


FIGURE 4.5 – Illustration du principe de résolution des équations de Takagi-Taupin (4.4) selon la grille de calcul (a). Le calcul de  $\psi_0$  et  $\psi_h$  est approximé par les dérivées discrètes, qui peuvent être résolues avec les trois valeurs des pochoirs (b). Ainsi, il est possible de calculer  $\psi_0, \psi_h$  dans toute la grille de calcul, colonne par colonne, en commençant par  $\psi_0$  puis  $\psi_h$ .

### Choix d'échantillonnage

Le choix naturel d'un échantillonnage infini est justifié pour obtenir un résultat convergent à la solution réelle, mais ceci exige un temps de calcul

infini. Une variable de type 'double float', avec une précision de 53 bits<sup>1</sup>, permet une précision sur une valeur numérique d'environ  $10^{-16}$ .

Dans la réalité, les différentes approximations effectuées dans les équations (4.4) ne permettent pas une précision meilleure que  $10^{-8}$ .

La limite basse de l'échantillonnage est définie empiriquement. Lorsque le résultat de calcul donne des valeurs infinies, alors l'échantillonnage n'est pas satisfaisant et doit être augmenté.

Il a été établi que l'échantillonnage  $N_z$  dans la direction  $\vec{u}_z$ , peut être égal à deux fois le nombre de bicouches qui compose la multicouche [105]. Quant à l'échantillonnage dans la direction  $\vec{u}_x$ , il peut s'établir selon l'angle d'incidence tel que  $N_x = N_z/\sin\theta$ , sachant que l'angle rasant des multicouches conduit typiquement à  $\sin\theta \approx 10^{-2}$ .

### 4.4.3 Limites et approximations du modèle

Dans cette partie, les limites et les approximations du modèle numérique sont commentées et résumées.

- Différence finie et précision numérique : Les relations analytiques ne sont pas dépendantes d'un degré de précision. Cependant, leurs solutions numériques souffrent d'un degré de précision numérique lié aux erreurs d'arrondi et de troncature. Ainsi, la résolution numérique d'une simulation dépend du choix adapté de l'échantillonnage.  
Un échantillonnage élevé exigera plus de ressource et de temps. Des critères sur l'échantillonnage ont été énoncés précédemment, bien qu'ils n'aient pas été complètement testés, mais une estimation des erreurs par comparaison a été effectuée [105].
- Théorie scalaire : Le formalisme développé et utilisé pour ce travail ne considère pas l'aspect vectoriel des équations de Maxwell. Les équations de Takagi-Taupin sont dérivées de l'équation de Helmholtz (4.1).
- Approximation à deux ondes : La considération de seulement deux ondes, les ondes incidente et diffractée, est justifiée pour les multicouches du fait de la loi de Bragg. Cette approximation est largement

---

1. norme arithmétique nombre à virgule flottante IEEE 754 : double précision (64 bits : 1 bit de signe, 11 bits d'exposant (-1022 à 1023), 53 bits de mantisse, dont un bit 1 implicite). [https://fr.wikipedia.org/wiki/IEEE\\_754](https://fr.wikipedia.org/wiki/IEEE_754)

utilisée pour les cristaux. Or les multicouches sont équivalentes à des monocristaux avec de grands paramètres de maille.

- Interface air/multicouche : Les conditions d'illumination de la multicouche sont artificiellement considérées, car celles-ci sont directement illuminées, sans interface avec l'air. La réfraction existante est considérée pour la détermination des épaisseurs de bicouche de manière à ce que les distances optiques parcourues dans les couches soient équivalentes. De plus, l'indice de réfraction appliqué est l'indice de réfraction moyen de la multicouche, en vertu de l'approximation à deux ondes.
- Structure Idéale :  
La structure théorique parfaite d'une multicouche est telle que la fonction de susceptibilité électromagnétique décrivant cette structure est une fonction rectangle strictement périodique. Or, seuls les coefficients d'ordre 0 et 1 sont considérés dans les équations de Takagi-Taupin, soit une fonction sinusoïdale. Dans la réalité, pour des multicouches de période de l'ordre du nanomètre, la rugosité aux interfaces et la diffusion chimique des matériaux tendent à approcher la fonction d'une forme sinusoïdale.  
De plus, le processus de dépôt est susceptible d'introduire d'autres biais, dans la structure théorique parfaite, comme une distribution aléatoire des épaisseurs de bicouche.



## **Chapitre 5**

### **Extension du modèle numérique**



*Couches formant les rayons ligneux d'un arbre*

## 5.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, il a été montré que la théorie de Takagi-Taupin peut s'appliquer aux multicouches. La méthode de résolution numérique a été appliquée pour simuler des multicouches plates et parfaites. Logiquement, un miroir multicouche sans défaut réfléchit l'onde incidente de manière parfaitement homogène. Or, expérimentalement, l'onde réfléchie par une multicouche est imparfaite. Après réflexion, l'énergie incidente n'est pas entièrement réfléchie, la cohérence spatiale et l'homogénéité spatiale de l'onde incidente ne sont pas conservées. L'intensité diffractée n'est pas conservée car les éléments de la multicouche sont partiellement absorbants, alors que la cohérence spatiale et l'homogénéité du faisceau sont dégradées par la présence de défauts. L'effet principal des défauts d'un miroir multicouche, visible expérimentalement, est la présence de lignes d'intensité dans le faisceau diffracté. Ces lignes d'intensité sont la conséquence des défauts. Ainsi, l'étude des lignes d'intensité est utilisée pour tenter de déterminer les défauts présents dans un miroir multicouche. Parce que les motifs d'intensité changent selon la distance entre le miroir multicouche et le détecteur, les défauts sont apparentés à des perturbations de phase. Or, des erreurs de hauteur sont susceptibles de provoquer des changements de phase (figure (5.1.a)), comme cela a été décrit pour les cristaux ou lors de réflexions totales [73, 74]. Ainsi, des défauts correspondants à des erreurs de hauteur peuvent produire des lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi. Cependant, des écarts de hauteur à la surface d'une multicouche sont supposés produits par une reproduction des défauts du substrat [71, 63]. De cette manière, les couches sont localement parallèles et de période constante (figure (5.1.b) et (5.1.c)). Alors, les écarts de hauteur se traduisent par un champ de déplacement de la fonction de susceptibilité électromagnétique de la multicouche.

Dans le cadre de la théorie de Takagi-Taupin, la description physique des

erreurs de hauteur doit prendre en compte ces deux considérations.

De plus, pour parvenir à une modélisation complète du problème des lignes d'intensité, deux modules auxiliaires ont été ajoutés, en vue de la simulation des multicouches.

Le premier est un code de propagation de champ d'ondes simulées avec les équations de Takagi-Taupin. Le but est de reproduire la propagation de l'onde réfléchie jusqu'au détecteur. Le second code permet de reproduire les effets de largeur de cohérence spatiale de la source, qui est en réalité partiellement cohérente.

Ainsi, dans ce chapitre, seront présentés la méthode d'implémentation des défauts de hauteur et les choix dans les principales extensions du modèle, basés sur les équations de Takagi-Taupin. Le modèle de propagation, tout comme la considération des largeurs de cohérence spatiale de la source, seront analysés dans la section 5.3.

## 5.2 Implémentation des défauts

### 5.2.1 Champ de déplacement de la structure, introduit par les écarts de hauteur

Comme cela est illustré sur la figure (5.1.b), une conséquence du dépôt de couches fines est la transmission des défauts du substrat dans toute la structure périodique de la multicouche. Cela introduit alors un champ de déplacement. Le déplacement est exactement l'écart de hauteur local du substrat, avec l'hypothèse que la période est inchangée dans toute la multicouche.

Pour simplifier l'écriture,  $\chi'(x_n, z)$  est notée  $\chi'_n(z)$  et le déplacement vertical  $\epsilon$  dépendant de  $x_n$  sera noté  $\epsilon_n$ .

$$\begin{aligned}\chi'_n(z) &= \chi(z - \epsilon(x_n)) \\ &= \chi_0 + \sum_{\tilde{h} \neq 0} \chi_{\tilde{h}} e^{i\tilde{h} \cdot (z - \epsilon_n)} \\ &\approx \chi'_{0n} + \chi'_{\bar{1}n} e^{-i\tilde{h} \cdot z} + \chi'_{1n} e^{i\tilde{h} \cdot z}\end{aligned}\tag{5.1}$$

Où  $\tilde{h} = 2\pi/\Lambda^B$ ;  $\Lambda^B$  l'épaisseur d'une bicouche. Les coefficients de Fourier de la susceptibilité électromagnétique deviennent :

$$\begin{aligned}\chi'_{0n} &= \chi_0 \\ \chi'_{\bar{1}n} &= \chi_{\bar{1}n} e^{i\tilde{h}\epsilon_n} \\ \chi'_{1n} &= \chi_{1n} e^{-i\tilde{h}\epsilon_n}\end{aligned}$$

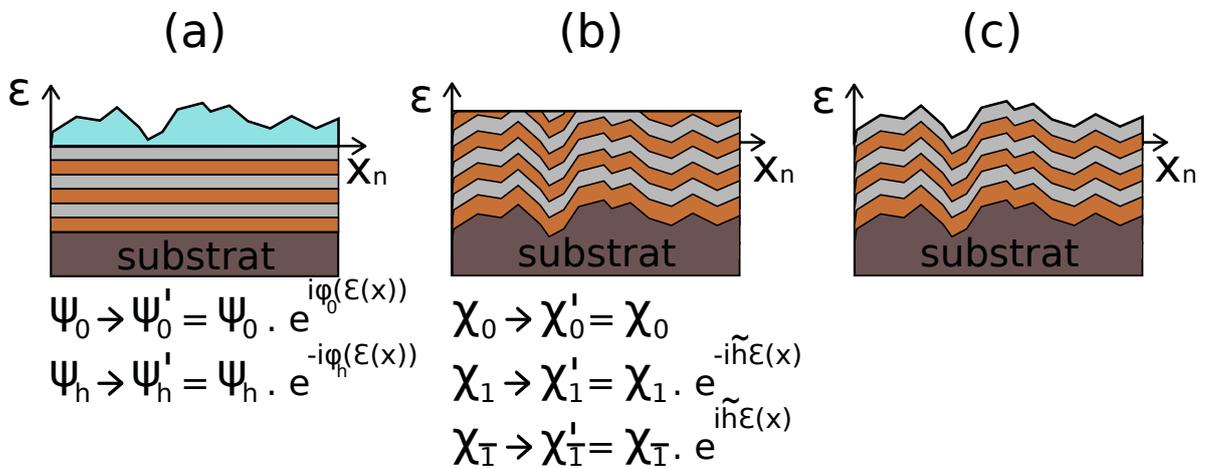


FIGURE 5.1 – Illustration des effets d'erreur de hauteur sur la structure multicouche. (a) Les effets à la surface modifient les conditions aux limites, bien que la structure multicouche reste parfaite. (b) Les effets dans le volume modifient la structure multicouche et créent un champ de déplacement produit par le substrat sur toutes les couches. (c) Une modélisation complète des effets induits par les défauts de hauteur du substrat sur toute la structure de la multicouche et sur la propagation d'ondes électromagnétiques exige de superposer ces deux contributions ; cependant il a été montré dans le paragraphe 4.2 que le cas (a) est négligeable et de ce fait les cas (b) et (c) sont équivalents.

remarque : Désormais sont appelés offset, les effets de champ de déplacement.

## 5.2.2 Simulation de multicouche dans le volume et cartographie des hauteurs

L'objectif de produire un modèle permettant de simuler les lignes d'intensité obtenues expérimentalement dans un détecteur à deux dimensions nécessite de simuler la multicouche dans son volume. Le modèle initial a été étendu, pour simuler le volume, en effectuant les calculs de propagation en deux dimensions, pour plusieurs profils indépendants. C'est-à-dire qu'il n'y a pas de propagation de champ d'ondes entre chaque profil. Cette simplification numérique est possible car les effets transverses sont négligeables.

### 5.2.3 Test d'implémentation et commentaire sur le modèle

#### Changement des conditions limites.

Comme il a été montré dans la partie 4.2, les conditions aux limites varient de manière négligeable. Ainsi, les conditions aux limites sont considérées constantes et définies comme dans le paragraphe §4.4.1 (chapitre 4).

#### 'Champs de déplacement' de la structure multicouche.

L'implémentation du champ de déplacement a été testée indépendamment, avec des profils de hauteur constante, de valeur  $C_1, C_2...$  (soit  $\forall n, \epsilon_n = C_1, C_2...$  c'est-à-dire un champ de déplacement correspondant à une hauteur non nulle et identique sur l'ensemble du profil). Les résultats des tests montrent une intensité et une phase constantes sur toute la longueur du miroir, pour ces profils de hauteur constante.

On observe aussi que la valeur de la phase de l'onde réfléchie change selon la hauteur des profils.

Un champ de déplacement non-homogène de la structure périodique (où la hauteur de déplacement change, soit :  $\epsilon_n = \epsilon(x)$ ) produit donc des variations de phase dans l'onde réfléchie.

#### Limite de l'implémentation des défauts de hauteur.

L'idée initiale consistant à perturber la phase du front d'ondes réfléchies avec des défauts de hauteur, a conduit à introduire les considérations précédentes. Cependant, les erreurs de hauteur introduisent aussi des erreurs de pente. Or, le modèle actuel ne peut pas considérer ces erreurs de pente. En effet, la pente de la structure périodique est considérée constante et nulle en respectant les conditions de Bragg dans l'équation (4.8).

Cependant, un test d'une multicouche dont le profil de hauteur varie de manière constante a été comparé avec la même multicouche, pour un profil de hauteur constamment nul, figure (5.2.a). Alors, les variations de hauteur modifient la phase de l'onde diffractée et modulent l'intensité moyenne diffractée par la multicouche et produisent les oscillations de la figure (5.2.b). Néanmoins, cela ne déplace aucunement la position du pic de la courbe de Bragg. Ceci démontre que ce modèle ne tient pas compte des erreurs de pente.

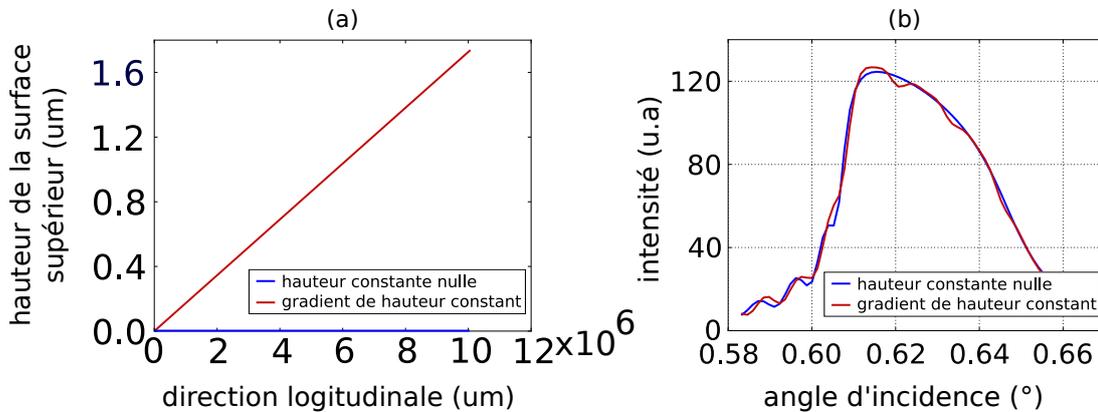


FIGURE 5.2 – (a) Représentation des hauteurs de la surface d’une multicouche, simulée dans le cas où la fonction  $\epsilon_n(x)$  est constante (en bleu) et (en rouge) le cas où la fonction  $\epsilon_n(x)$  a un gradient de hauteur, correspondant à une erreur de pente d’un angle de 10 degrés. (b) Les courbes de réflectivité, obtenues avec les simulations, à la surface de la multicouche selon le profil de hauteur (profil de la fonction  $\epsilon_n(x)$ ).

### Implémentation complémentaire possible.

Les erreurs de pente sont des défauts qui peuvent être considérés par réajustement local de l’angle d’incidence. Cependant, l’implémentation est complexe et exige de lourdes modifications du code, sans garantie d’une reproduction fidèle de la réalité des erreurs de pente. La complexité de l’implémentation de ce type de défaut est liée à la construction initiale du code qui n’était pas prévu pour cela.

Le choix a donc été de limiter les considérations aux défauts de hauteur seulement, car ils étaient supposés prépondérants (dans un premier temps durant le projet de thèse).

De la même façon, des variations de période de la structure multicouche peuvent être envisagées. Mais, comme pour les erreurs de pente, cela est complexe à mettre en œuvre.

D’autres défauts, comme l’inter-diffusion des couches, la rugosité aux interfaces ou des variations d’épaisseur des couches, sont encore plus difficiles à introduire dans le modèle. Leurs contributions dans la création de contraste d’intensité sont théoriquement limitées.

## **Simulation du volume de la structure multicouche**

Le besoin de simuler le volume d'un miroir multicouche est justifié par la volonté de reproduire les lignes d'intensité dans un détecteur à deux dimensions. Le choix a été, pour cela, de faire des simulations à deux dimensions (longueur et profondeur de la multicouche), indépendamment, pour plusieurs profils distribués sur la largeur de la multicouche. Cela reste cohérent avec des effets transverses négligeables dans la multicouche, même si d'autres effets transverses, comme les largeurs de cohérence, sont importants à prendre en compte.

L'obligation de simuler un volume conduit à multiplier le temps de calcul par le nombre de profils, mais n'affecte pas la mémoire nécessaire à l'exécution des calculs.

Pour l'ensemble des simulations, il est désormais nécessaire de définir une matrice 2D contenant la cartographie des hauteurs de la multicouche à simuler. Alors, les hauteurs sont exploitées indépendamment, pour chaque profil, et permettent d'obtenir une cartographie des ondes diffractées dans une matrice 2D.

### **Modélisation du substrat.**

Le modèle ne reproduit pas le substrat sur lequel la structure périodique repose. En effet, en condition de Bragg, le substrat n'a pas d'influence sur la propagation des ondes dans la multicouche, car il s'agit le plus souvent d'un cristal, avec des conditions de Bragg différentes de celles de la multicouche. De plus, le nombre de couches est calibré pour diffracter l'ensemble de l'énergie incidente, sans que celle-ci ne parvienne jusqu'au substrat. Le substrat ne peut pas avoir d'influence directe sur les photons X du faisceau puisqu'il ne l'atteignent pas.

Néanmoins, le substrat a une influence, à priori importante, sur la géométrie de la structure périodique considérée.

## **5.3 Propagation et détecteur**

Les résultats de simulation obtenus avec le modèle Takagi-Taupin pourront, après propagation, être comparés avec des mesures expérimentales, effectuées sur une ligne de lumière. En effet, les lignes d'intensité apparaissent avec la propagation entre le miroir multicouche et le détecteur.

Les caractéristiques du détecteur sont à prendre en considération pour tenter de définir les propriétés géométriques des défauts à l'origine des lignes d'intensité.

La maîtrise de l'algorithme de propagation permettra d'adapter les données de simulation et d'ajouter des effets, comme la fonction d'étalement de point du détecteur ou une fonction de dispersion de la multicouche. C'est pourquoi, le module de propagation a dû être entièrement créé pour les simulations de multicouche.

### 5.3.1 Méthode d'implémentation

#### Équations fondamentales

Le calcul du champ électromagnétique diffracté par la multicouche, dans le plan de détection, utilise la formule de diffraction de Fresnel-Kirchhoff.

$$E(x, y, z) = -\frac{iE_0}{\lambda} \iint_S N(\theta) \frac{e^{ik(r+s)}}{rs} dS$$

Où  $N(\theta)$  est le facteur d'obliquité (ou facteur d'inclinaison) et  $r, s$  sont les distances représentées sur la figure (5.3.a).

Appliqué à la configuration de simulation illustrée figure (5.3.b), le champ électromagnétique au point  $M(x, y, z)$  est :

$$\begin{aligned} E(M) &= -\frac{i}{\lambda x} \iint_{S'} E(x', y', z') e^{ik\sqrt{(x-x')^2+(y-y')^2+(z-z')^2}} dS' \\ &= -\frac{i}{\lambda x} E(x, y, z) \otimes e^{ik\sqrt{x^2+y^2+z^2}} \end{aligned} \quad (5.2)$$

Où  $\otimes$  est le produit de convolution. Le champ électromagnétique, dans le plan de détection, est obtenu avec le produit de convolution et le propagateur d'onde.

Avec  $x \gg y, z$ , le développement limité, appliqué dans l'équation 5.2, permet de retrouver la diffraction de Fresnel :

$$E(M) = -\frac{i}{\lambda} \frac{e^{ikx}}{x} \iint_{S'} E(x', y', z') e^{\frac{ik}{2x}[(y-y')^2+(z-z')^2]} dS'$$

La longueur d'onde de l'ordre de  $0.1\text{\AA}$  et les ouvertures de faisceau (dans le plan orthogonal à la direction de propagation) ' $a$ ' sont de l'ordre du millimètre. Les distances d'observation (de propagation  $D$ ) des lignes d'intensité, sont largement inférieures à  $\frac{2a^2}{\lambda} = 2.10^5 m$ . Les lignes d'intensité sont

donc produites dans le cadre de la diffraction de champ proche radiatif (zone de Fresnel).

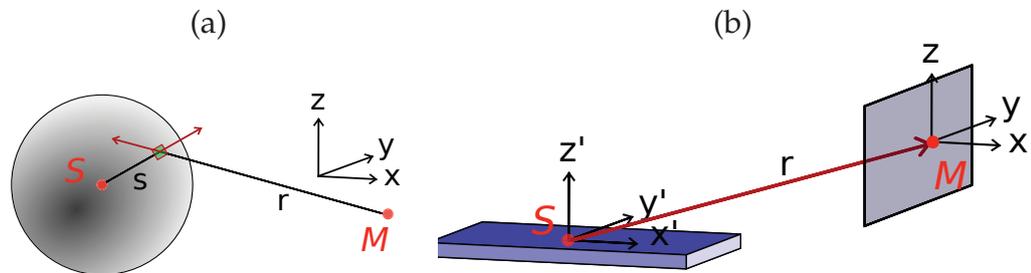


FIGURE 5.3 – (a) Système de coordonnées utilisé pour l'intégrale de Fresnel-Kirchhoff, où un point source  $S$  émet une onde sphérique et où le champ électromagnétique total est calculé au point  $M$ . (b) Illustration du schéma de diffraction, où un point source  $S$  de la multicouche émet une onde vers le point  $M$  du plan de détection.

### Implémentation numérique

Pour implémenter la diffraction de Fresnel il suffit de faire le produit de convolution entre la matrice de l'onde diffractée et la matrice du propagateur.

### Matrice d'onde diffractée

Les résultats de simulation de l'onde diffractée sont projetés dans le plan orthogonal à la direction de propagation définie, selon l'angle de réflexion et au centre de la multicouche. L'onde diffractée a été préalablement projetée sur le plan orthogonal au vecteur d'onde diffractée.

### Matrice du propagateur

La matrice du propagateur est construite sur les propriétés du détecteur. Le détecteur simulé doit avoir les mêmes propriétés que le détecteur expérimental. Les détecteurs d'imagerie sont généralement des détecteurs pixelisés donnant une image sous la forme d'une matrice. Ainsi, une matrice à deux dimensions, équivalente au détecteur, est générée avec un nombre de lignes et de colonnes et une taille de pixel.

La matrice du détecteur est remplie avec les coordonnées géométriques de chacun des pixels du détecteur, qui sera toujours considéré centré sur le faisceau diffracté et à une distance  $r$  du centre de la multicouche (figure (5.4)).

Le propagateur  $P_{uv}$  s'obtient par l'opération matricielle :

$$P_{uv} = e^{ik(r^2 + D_{uX}^2 + D_{vY}^2)^{1/2}} \quad (5.3)$$

où  $D_{Xu}$  et  $D_{Yv}$  sont les matrices de coordonnées à une dimension, dans les directions  $x$  et  $y$ , et  $r$  la distance, entre le centre de la multicouche et le détecteur, comme illustré sur la figure (5.4).

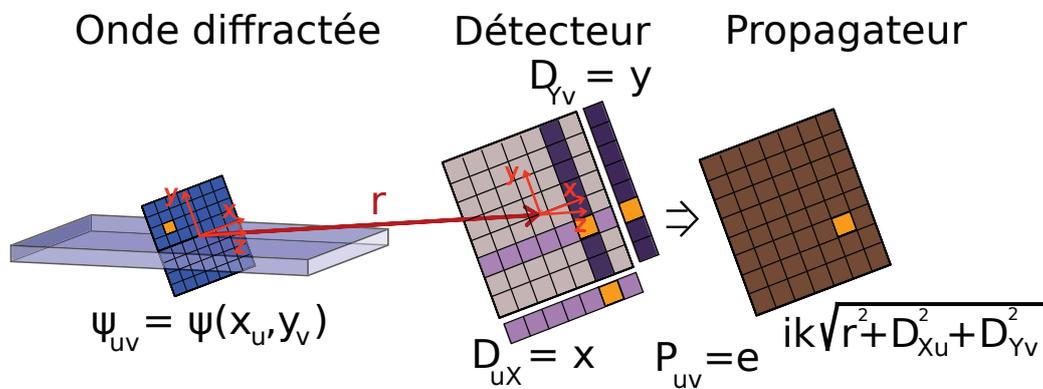


FIGURE 5.4 – La matrice de l'onde diffractée est obtenue par la projection des résultats de simulation dans le plan  $(x,y)$  orthogonal à la direction de propagation. La matrice du propagateur est obtenue à partir des coordonnées de chaque pixel du détecteur, contenues dans les vecteurs  $Dx$  et  $Dy$ .

### Produit de convolution entre deux matrices

Un produit de convolution entre deux matrices, respectivement de  $u_1, u_2$  lignes et  $v_1, v_2$  colonnes, consiste en une série de multiplications et de sommes. Cependant, le nombre d'opérations à effectuer par le processeur est de  $u_1 \times v_1 \times u_2 \times v_2$  multiplications et autant de sommes, soit pour deux matrices de  $2048 \times 2048$  éléments, plus de  $35.10^{12}$  opérations.

Pour effectuer un produit de convolution rapidement, il est commun de passer dans l'espace réciproque. En effet, la transformée de Fourier transforme le produit de convolution matriciel en un produit de matrices.

Ainsi, le calcul du champ électromagnétique dans le détecteur est effectué dans l'espace réciproque pour gagner en efficacité. Cela permet aussi d'introduire rapidement des effets complémentaires comme la fonction d'étalement du point du détecteur ou une fonction de dispersion de la multicouche, sans augmenter le nombre d'opérations mathématiques nécessaire.

### Transformée de Fourier numérique (Fast Fourier Transform)

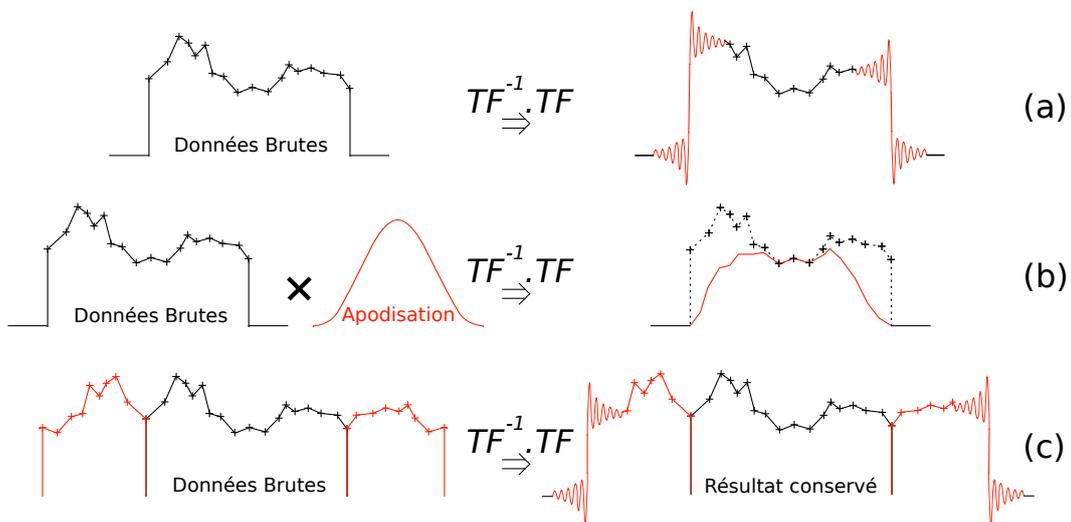


FIGURE 5.5 – Illustration des principes de réduction du Phénomène de Gibbs. (a) La transformée de Fourier inverse, de la transformée de Fourier directe est appliquée sur les données brutes, alors la forte discontinuité aux bords de la matrice produit le phénomène de Gibbs, illustré en orange. (b) Le même calcul est appliqué sur les données multipliées par une fonction de fenêtrage, alors le phénomène de Gibbs est annulé mais une perte de données se produit sur les bords. (c) Une complétion par symétrie des données élargit le signal sans modifier la transformée de Fourier, ainsi le phénomène de Gibbs se produit sur les bords de la matrice élargie et il est donc possible de conserver la partie initiale des données après les transformées de Fourier directe et inverse. De plus, la complétion permet d'améliorer l'efficacité de la transformée de Fourier rapide si le nombre de points est une puissance de 2.

Numériquement, les transformées de Fourier sont effectuées avec la Transformée de Fourier Rapide (Fast Fourier Transform). Les calculs sont plus rapides mais certaines précautions doivent être prises pour éviter des

artefacts numériques.

Leur principale cause est la discontinuité aux bords de la matrice à transformer, liée au nombre fini d'éléments qui composent la matrice. Or la transformée de Fourier est le calcul d'une intégrale sur le domaine de définition  $\mathbb{R}$ . La transformée de Fourier de cette forte discontinuité introduit des variations de haute fréquence (figure (5.5.a)). Ce problème est connu sous le nom de phénomène de Gibbs.

Une solution est d'atténuer les bords de la matrice et donc d'affaiblir la discontinuité ; c'est le principe de l'apodisation ou du fenêtrage. Les fenêtres les plus connues sont les fonctions de Hanning, Hamming, Blackman et autres. Le phénomène de Gibbs est supprimé mais l'apodisation induit malgré tout une perte d'information sur les bords car elle est progressivement modulée à zéro (figure (5.5.b)).

Une autre méthode a été tentée pour résoudre ce problème, tout en limitant la perte de donnée sur les bords. L'utilisation optimale de la transformée de Fourier rapide nécessite que le nombre total de points de la matrice soit une puissance de 2. Si le signal est composé de  $N$  points et que  $P$  est un nombre de points de valeur égale à zéro qui complète le signal par la technique de complétion de zéro (Zero Padding) tel que  $N + P = n^2$ ,  $n$  aléatoire, alors la fréquence d'échantillonnage est augmentée, ainsi que la précision de la Transformée de Fourier.

Dans le module de propagation, une complétion symétrique du signal a été aussi testée pour limiter le phénomène de Gibbs et conserver la précision de la Transformée de Fourier. Cela consiste à répliquer le signal sur les deux extrémités (figure (5.5.c)).

Des tests comparatifs de la réduction du phénomène de Gibbs ont été effectués. Le choix de la méthode reste qualitatif.

### **Effets complémentaires implémentés**

Les paramètres complémentaires suivants ont été implémentés en vue de reproduire fidèlement la réalité expérimentale à un système d'imagerie : soit une fonction d'étalement du point du détecteur, pour traduire le fait que la réponse à un point source n'est pas impulsionnelle. Le détecteur principalement utilisé durant ce projet de thèse est une caméra de type FRELON dont le scintillateur produit une réponse percussionnelle d'environ  $1.5 \mu m$  de largeur à mi-hauteur. Ainsi, la fonction d'étalement du point est modélisée sous la forme d'une fonction de Gauss à deux dimensions. Une fonction de dispersion de la multicouche a aussi été considérée pour traduire la déviation angulaire de l'image d'un point source réfléchi par

la multicouche. Son implémentation a été motivée par la possibilité de caractériser la multicouche avec la technique de 'Rocking Curve Imaging'. La forme de la courbe obtenue est en réalité du type Log Normal, mais sera considérée comme une fonction Gaussienne à deux dimensions en première approche. A la différence de la fonction d'étalement du point du détecteur, cette fonction dispersive module l'amplitude du propagateur et cette modulation dépend de la distance de propagation.

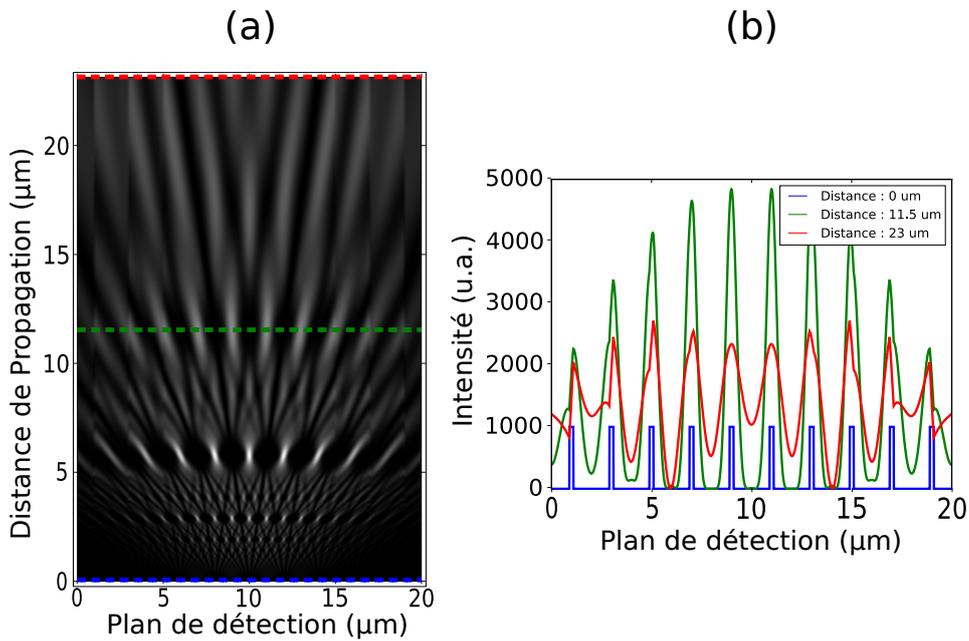


FIGURE 5.6 – (a) Motif de Talbot reproduit avec le module de propagation sur deux fois la distance de Talbot ( $z_t \approx 11.5\mu\text{m}$ ), pour un réseau de fonctions portes, dont la période est de  $2\mu\text{m}$ , et dont l'angle de propagation avec la surface est  $\theta = 10.9\text{mrad}$ . (b) Profils d'intensité obtenus pour des plans de détection placés aux distances de  $0\mu\text{m}$ ,  $z_t = 11.5\mu\text{m}$  et  $2z_t = 23\mu\text{m}$ . Ces profils permettent de valider les propagations.

### 5.3.2 Test d'implémentation

Le module de propagation (en particulier la gestion des distances de propagation et des différences d'échelle), a été validé par la recherche du motif appelé "tapis de Talbot" (figure (5.6.a)) (Talbot Carpet). Le tapis de Talbot est un effet de diffraction à distance finie (Fresnel). Si

$\psi(x, z = 0)$  est périodique,  $\psi(x + T, 0) = \psi(x)$ , alors  $\psi(x, z)$  est aussi périodique en  $z$  avec une période  $z_t = \frac{2T^2}{\lambda}$ .  $\psi(x, z)$  est donc périodique en  $x$  (période  $T$ ) et en  $z$  (période  $z_t$ , appelée distance de Talbot).

La figure (5.6.a) montre la diffraction, à différentes distances de propagation, d'un réseau unidirectionnel, constitué de 10 fonctions portes de  $2\mu m$  de période, lorsque celui-ci est éclairé par une onde monochromatique de longueur d'onde  $0.8265 \text{ \AA}$ . Le détecteur est positionné dans la direction de propagation  $2\theta$  où  $\theta = 10.9 \text{ mrad}$  est l'angle de réflexion de Bragg pour une multicouche, de période  $4 \text{ nm}$ . La figure montre la diffraction obtenue pour les distances comprises entre 0 et  $2z_t$ , avec  $z_t = \frac{2(T\sin\theta)^2}{\lambda} = 11.5\mu m$ . Comme illustré en (figure 5.6.c), les profils d'intensité pris aux première et deuxième distances estimées de Talbot sont bien des reproductions du réseau et valident la propagation, en particulier les distances de propagation.

### 5.3.3 Commentaire sur le module de propagation

#### Phénomène de Gibbs

Il n'existe pas de méthode universelle permettant de résoudre le phénomène de Gibbs. Plusieurs techniques sont implémentées et peuvent limiter ce problème. Néanmoins, la méthode qui consiste à effectuer une complé- tion par symétrie de la matrice s'est montrée satisfaisante dans la majorité des simulations.

#### Validation du module de propagation

Le module développé est validé dans la mesure où il est capable de reproduire le motif caractéristique, que l'on appelle 'Tapis de Talbot'.

#### Effets complémentaires

Les fonctions d'étalement ont été considérées dans le module. Le principal effet de la fonction d'étalement du point est de réduire le contraste d'intensité dans le détecteur.

## 5.4 Cohérence du faisceau

La cohérence caractérise la capacité d'une onde à produire des interférences. Jusqu'à présent, le problème des lignes d'intensité des multicouches a été considéré avec une source ponctuelle et monochromatique.

La cohérence de la source se compose de la cohérence temporelle et de la cohérence spatiale. La première traduit la largeur de bande spectrale  $\Delta\nu$  de la source, la seconde rend compte de la taille de la source, vue par l'observateur. La longueur (temporelle) et les largeurs (spatiales) de cohérence permettent de définir l'espace géométrique dans lequel les ondes peuvent interférer.

Pour une source parfaitement monochromatique, la longueur de cohérence temporelle  $L_c$  est infinie,  $L_c = \lambda^2/\Delta\lambda$ . Dans la réalité, les sources de rayons X dans les synchrotrons sont polychromatiques (large bande spectrale). Afin d'obtenir un faisceau monochromatique, un monochromateur à double cristal peut être employé. La cohérence temporelle obtenue avec les monochromateurs à double cristal est généralement de  $1 \mu m$ .

Or, la bande passante (dépendante de la largeur de la courbe de diffraction) des cristaux est jusqu'à cent fois inférieure à celle des miroirs multicouche. Cela nous permet de faire l'hypothèse d'une onde monochromatique, car la réponse de la multicouche sera la même sur toute la bande passante du monochromateur à double cristal.

En revanche, les sources synchrotrons ont des cohérences spatiales partielles (taille de la source non négligeable), qui peuvent varier selon le type d'instrumentation de source (Aimant de courbure, Onduleur, Wiggler). La taille de la source peut se déduire à partir de la mesure des largeurs de cohérence du faisceau, où  $R$  et  $S_l$  sont représentés sur la figure (5.7).

$$L = \frac{\lambda R}{2 S_l}$$

A partir des valeurs de cohérences spatiales détaillées dans le chapitre 2 (§2.5), les dimensions de la source<sup>1</sup> sont  $S_{lv} = 53.32 \mu m$ ,  $S_{lh} = 183.55 \mu m$ . Cela signifie aussi, qu'il existe une différence d'angle d'incidence, selon la position où l'onde est émise. Ainsi, les écarts d'angle d'incidence<sup>(\*)</sup> sur un échantillon positionné à  $40 m$  de la source sont  $\Delta\theta_v = 1.32 \mu rad$  et  $\Delta\theta_h = 4.59 \mu rad$ .

Bien que ces écarts d'angle soient faibles, ils sont du même ordre de gran-

---

1. Les valeurs calculées sont données pour des largeurs de cohérence mesurées, correspondantes à la largeur à mi-hauteur des objets mesurés. Par la suite les largeurs de cohérence seront réduites à  $5\sigma$ .

deur que les écarts de pente de la structure des multicouches et ils ne peuvent donc pas être négligés.

L'implémentation, dans le modèle de Takagi-Taupin et dans le module de propagation, des largeurs de cohérence spatiale, exigerait de remplacer les ondes cohérentes par les intensités mutuelles. Or, il est possible de rendre compte des effets de cohérence partielle sans refaire les calculs avec les intensités mutuelles. Pour cela, il suffit de considérer la source étendue comme une distribution de sources cohérentes et d'additionner les résultats d'intensité de chaque source.

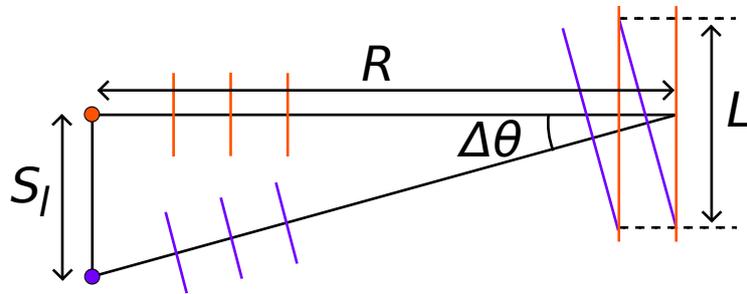


FIGURE 5.7 – Illustration de la largeur de cohérence spatiale  $L$  entre deux sources ponctuelles et monochromatiques espacées d'une distance  $S_1$ .

### 5.4.1 Implémentation numérique

Pour la simulation de la multicouche, seuls les écarts d'angle d'incidence dans la direction verticale de la figure (5.8) sont pris en compte, car les effets transverses sont négligeable, du point de vue de la propagation des ondes dans la multicouche. Pour la simulation de propagation entre la multicouche et le détecteur, les écarts d'angle d'incidence dans les deux directions ne sont pas négligeables.

La simulation de la multicouche est effectuée indépendamment pour chacune des sources ponctuelles, qui composent la source étendue dans la direction verticale. Les résultats des simulations de Takagi-Taupin, de chaque source verticale, sont alors propagés.

La somme des intensités est implémentée dans un module complémentaire, pour toutes les cartographies d'intensité obtenues, après la propagation des résultats de Takagi-Taupin.

Une fonction Gaussienne bidimensionnelle reproduit la distribution d'intensité de la source ; les cartographies d'intensité sont additionnées avec la normalisation correspondante. De plus, les cartographies s'additionnent en différentes zones dans le détecteur car les angles d'incidence sont différents ; les sources ponctuelles dans la direction horizontale sont reproduites par l'addition des résultats des sources verticales, simplement répliquées et translattées, comme illustré figure (5.8.b).

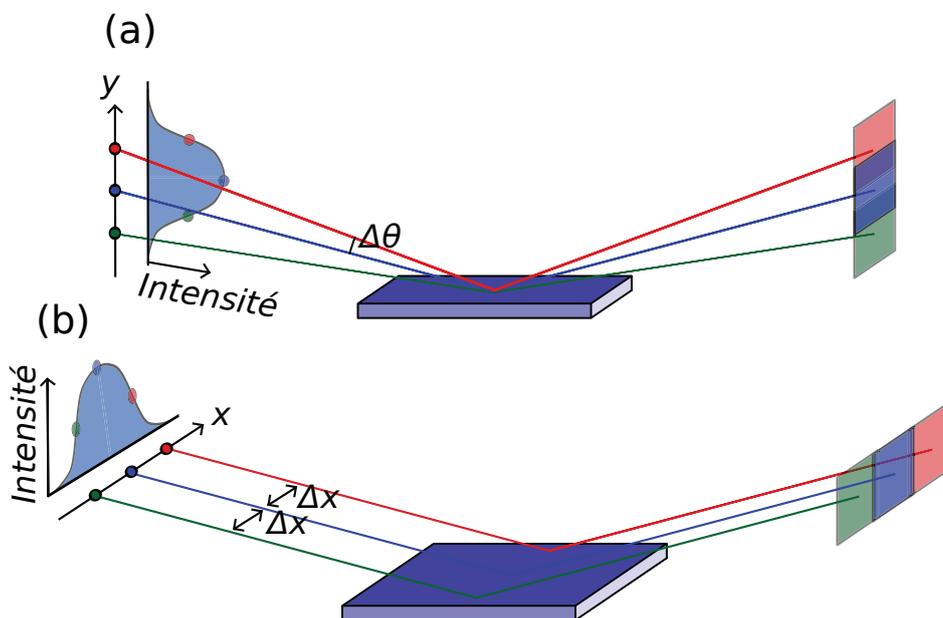


FIGURE 5.8 – Illustration des sommes de sources ponctuelles qui constituent la source étendue partiellement cohérente, respectivement selon les directions verticale (a) et horizontale (b). Dans la direction verticale, un écart d'angle d'incidence et de réflexion est introduit par la source étendue, tandis que, dans la direction horizontale, seule une translation est considérée.

## 5.4.2 Commentaire sur le module des largeurs de cohérence

### Échantillonnage de la source

L'échantillonnage de la source étendue est défini pour la direction verticale seulement, car elle seule nécessite une simulation. Pour la distribution des sources le long de l'axe horizontal, les résultats de simulation de la

source de même hauteur sont utilisés pour effectuer la somme des intensités mutuelles.

Un échantillonnage fin de la source permet d'obtenir des résultats d'une meilleure précision mais multiplie d'autant le temps de calcul nécessaire. Il n'est pas utile d'obtenir un échantillonnage de la source étendue de plus de 15 points car l'écart d'angle total de la source étendue à  $5\sigma$  est d'environ  $1.32 * 5/2.35 = 2.8 \mu rad$ , soit un écart d'angle d'incidence entre chaque source de  $\approx 0.19 \mu rad$ .

Néanmoins, multiplier le temps d'une simulation (environ 1h pour environ  $6 \cdot 10^9$  points de calcul de l'exemple, donné en annexe E), par le nombre de points sources n'est pas efficace. C'est pourquoi, le code a été parallélisé, pour distribuer les simulations sur plusieurs processeurs, typiquement un processeur par source ponctuelle (figure 5.9)).

### **Test d'implémentation**

Un test d'implémentation a été effectué avec une source dix fois plus étendue que la source de BM05, pour une multicouche sans défaut. La normalisation des intensités et le décalage dans le détecteur des intensités en fonction des distances de propagation ont été validés.

### **Effet des cohérences partielles**

La considération des effets de cohérence partielle produit les effets attendus de flou (ou réduction de visibilité des lignes d'intensité). Les motifs d'intensité, produits pour chaque point source, sont décalés. En additionnant toutes les intensités le contraste diminue par effet de floutage. Or, les largeurs de cohérence spatiale, verticale et horizontale sont différentes (d'un rapport de 3 dans notre cas). L'effet de flou est alors différent dans les directions verticale et horizontale. En conséquence, le contraste d'intensité sur les profils horizontaux est, beaucoup plus réduit et tend à produire des profils d'intensité constants dans la direction horizontale. Cela accentue la forme particulière des lignes d'intensité que l'on retrouve expérimentalement.

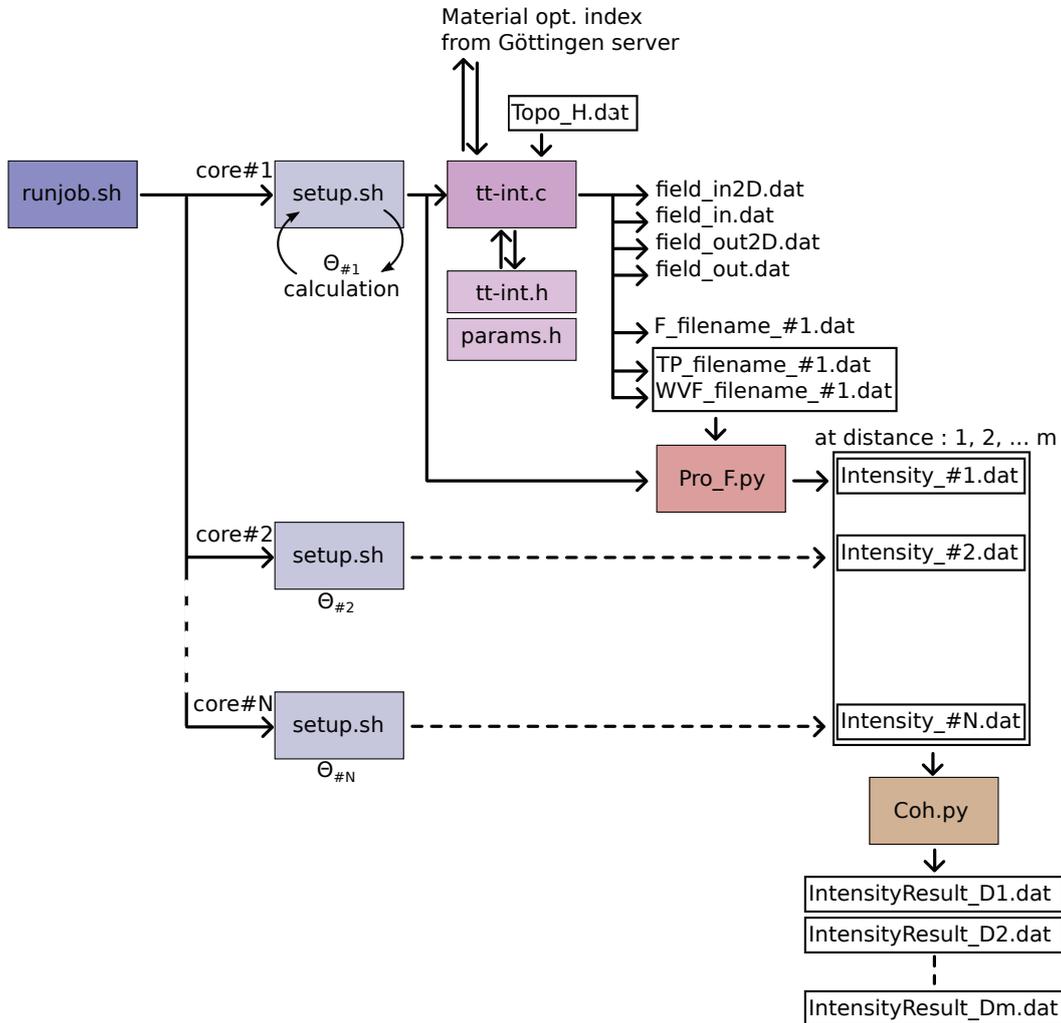


FIGURE 5.9 – Schéma bloc de fonctionnement des modules de simulation avec parallélisation des calculs. Tous les paramètres de simulation sont à définir dans le fichier 'setup.sh'. Lorsque les effets de cohérence (spatiale) partielle du faisceau ont besoin d'être considérés, les calculs sont distribués sur plusieurs cœurs, au moyen de 'runjob.sh'. Chaque cœur effectue les calculs pour une source ponctuelle et monochromatique dont l'angle d'illumination de la multicouche est calculé en fonction des propriétés de cohérence du faisceau et de l'échantillonnage de la source. Une fois les simulations sur chaque cœur effectuées, le script python 'Coh.py' compile l'ensemble pour donner les intensités dans le détecteur, avec les effets de cohérence (spatiale) partielle du faisceau, pour chaque distance, dans un fichier séparé. Le fonctionnement des programmes est détaillé en annexe E.

## 5.5 Conclusion intermédiaire sur le modèle

Les simulations suivantes ont pour but de montrer l'intégralité des modèles construits pour simuler les lignes d'intensité, produites par des défauts de hauteur, dans la structure multicouche du miroir. Les effets induits par chaque module sont illustrés et commentés.

L'échantillon simulé est la multicouche 091116 ( $W/B_4C$  composée de 60 couches, l'épaisseur de la bicouche est de  $4nm$ ). La cartographie des écarts de hauteur simulés est représentée figure (5.10).

Les dimensions pour la topographie totale sont  $99.8 mm$  par  $7.6 mm$  et pour la topographie partielle utilisée dans la simulation,  $10.04 mm$  par  $1.58 mm$ . La microrugosité de la zone simulée est  $1.34 nm (rms)$ , l'écart pic vallée est  $140 nm$ .

Cette cartographie est un échantillon d'une cartographie complète d'un miroir multicouche  $W/B_4C$ , 60, obtenue par interférométrie Fizeau. La configuration expérimentale de mesure par interférométrie est très différente de la simulation faite. Mais, ces données peuvent être utilisées pour des tests de simulation car elles sont typiques des défauts, considérés.

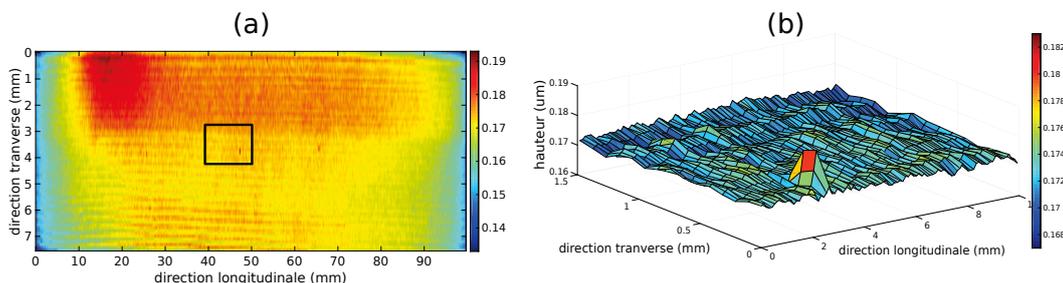


FIGURE 5.10 – (a) : Cartographie complète obtenue par mesure d'interférométrie Fizeau, résolution  $105.7 \times 105.7 \mu m^2$ , matrice de  $944 \times 15$  points correspondant à une surface de  $\sim 100 mm \times 1.5 mm$ . (b) : Zoom de la zone encadrée, utilisé pour simuler une surface de  $10 mm \times 1.5 mm$ .

Le paramétrage expérimental simulé est le suivant : une énergie des rayons X de  $15 keV$ , un angle de réflexion  $\theta = 10.9 mrad$ , ( $\sim 0.6245^\circ$ ), une distance source échantillon de  $40 m$ . Trois distances échantillon-détecteur sont simulées :  $20 cm$ ,  $60 cm$ ,  $100 cm$ . La source étendue est composée de 10 sources ponctuelles distribuées sur la largeur de la source à  $5\sigma$ . Les largeurs de cohérence spatiale étant  $L_v = 31 \mu m$ ,  $L_h = 9 \mu m$ , les dimensions à  $5\sigma$  de la source sont :  $S_{lv} = 53.32 \mu m$ ,  $S_{lh} = 183.55 \mu m$ . Les paramètres du détecteur correspondent à une caméra FRELON combinée à une optique de gros-

sisement . Ainsi, la matrice de pixels est composée de  $2048 \times 2048$  pixels, chacun ayant une dimension de  $0.75 \times 0.75 \mu m^2$ , soit un champ de vue de  $\sim 1.5 \times 1.5 mm^2$ . La fonction d'étalement du point du détecteur est définie par la largeur à mi-hauteur de la fonction Gaussienne, qui est de  $1.5 \mu m$ .

Les résultats de propagation dans la multicouche donnent la cartographie de l'onde réfléchie, figure (5.11). La figure (5.12) montre les intensités dans le détecteur, aux différentes distances, sans la cohérence partielle de la source. Les effets de cohérence partielle sont ajoutés sur la figure (5.13).

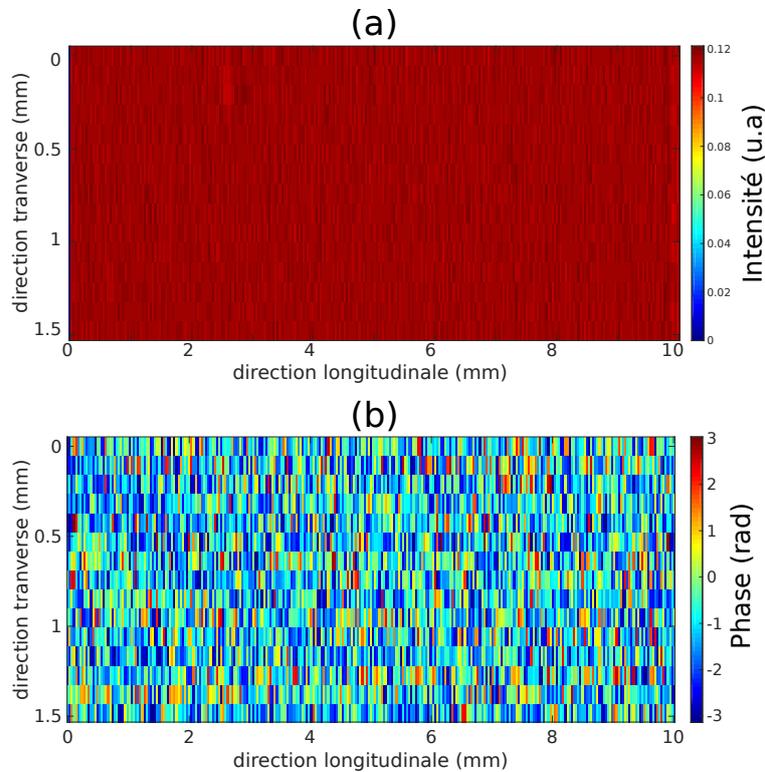


FIGURE 5.11 – (a), (b) sont respectivement, les cartographies projetées à la surface de la multicouche, de l'intensité et de la phase obtenues avec les défauts de hauteur, dans le modèle de Takagi-Taupin. Il est possible de constater des contrastes d'intensité, liés à des écarts de hauteur relativement grands dans la topographie utilisée.

## Défauts de hauteur dans le modèle de Takagi-Taupin

Les figures précédentes montrent que la considération des défauts de hauteur dans la structure multicouche produit des variations d'intensité et de phase. Ces perturbations peuvent donc être à l'origine des lignes d'intensité observées dans l'image du faisceau réfléchi par une multicouche. Les simulations avec des écarts de hauteur très grands (jusqu'à trente fois la période en comparaison avec la longueur d'onde) montrent de forts contrastes d'intensité à la surface de la multicouche ; ceux-ci ne sont pas observés expérimentalement, même après une courte distance de propagation.

## Propagation et détecteur

Le module de propagation rend effectivement compte des effets de la diffraction de Fresnel observés sur le faisceau réfléchi. De plus, la définition d'un détecteur aux paramètres équivalents à ceux du détecteur expérimental permet de s'approcher au mieux des effets expérimentaux.

## Cohérence partielle de la source

La considération de la cohérence partielle de la source est importante car elle permet de reproduire les lignes d'intensité observées expérimentalement. Les figures précédentes montrent les effets substantiels de la cohérence partielle sur les motifs d'intensité, lesquels s'accroissent à mesure que la distance de propagation augmente.

## En général

Les simulations montrent que l'introduction de la topographie des hauteurs d'une multicouche mène, dans certains cas, à l'apparition de motifs d'intensité. Les figures précédentes montrent que la propagation seule permet déjà de trouver des motifs étirés dans la direction horizontale. Cependant, cet effet est lié à la largeur de la résolution disponible pour les données obtenues par interférométrie Fizeau. La résolution de  $105.7 \times 105.7 \mu\text{m}^2$ , ne permet pas un échantillonnage suffisant dans la direction verticale, du fait de l'effet de projection induit par l'angle de Bragg rasant.

Ces simulations ont renforcé le besoin de nouvelles méthodes de caractérisation expérimentales des défauts des multicouches, assurant une résolution spatiale de mesure et une sensibilité des écarts de hauteur plus adéquates. Cela nous a conduit à appliquer les techniques des tavelures en champ proche, de holographie, de "RCI" et  $\theta/2\theta$  Imaging discutées dans les chapitres 2 et 3.

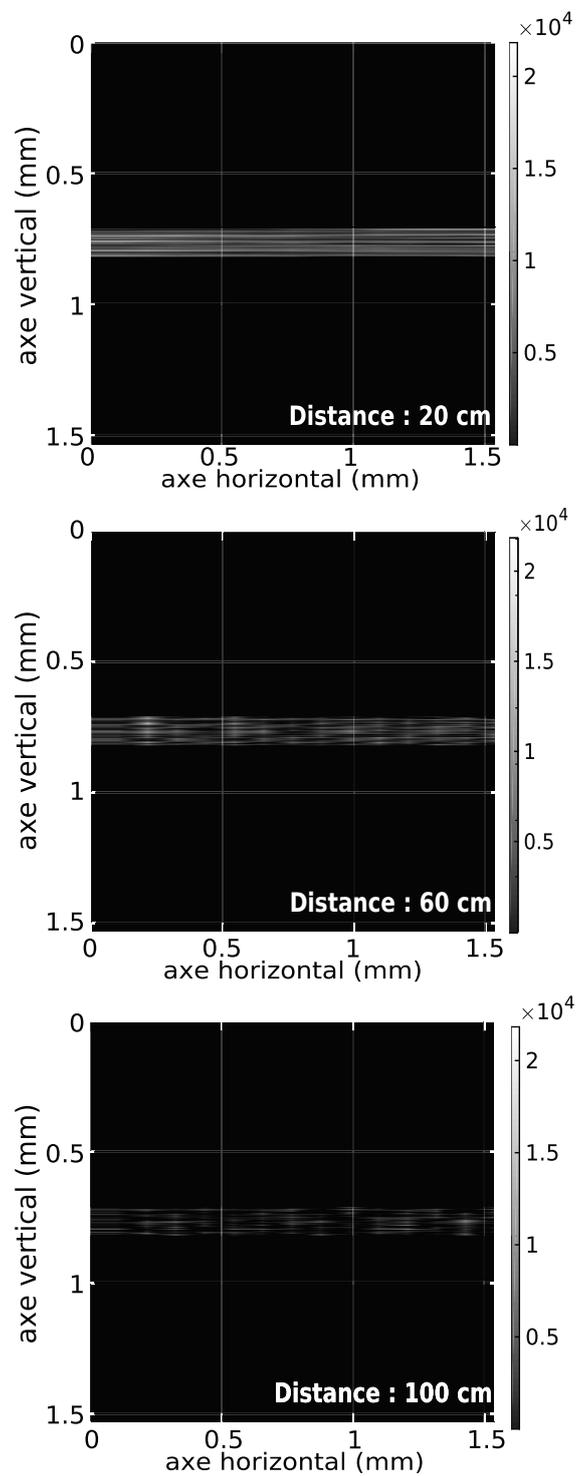


FIGURE 5.12 – Résultats de propagation à différentes distances avec le modèle Takagi-Taupin, pour une source (synchrotron) cohérente et un détecteur aux caractéristiques d'un détecteur réel.

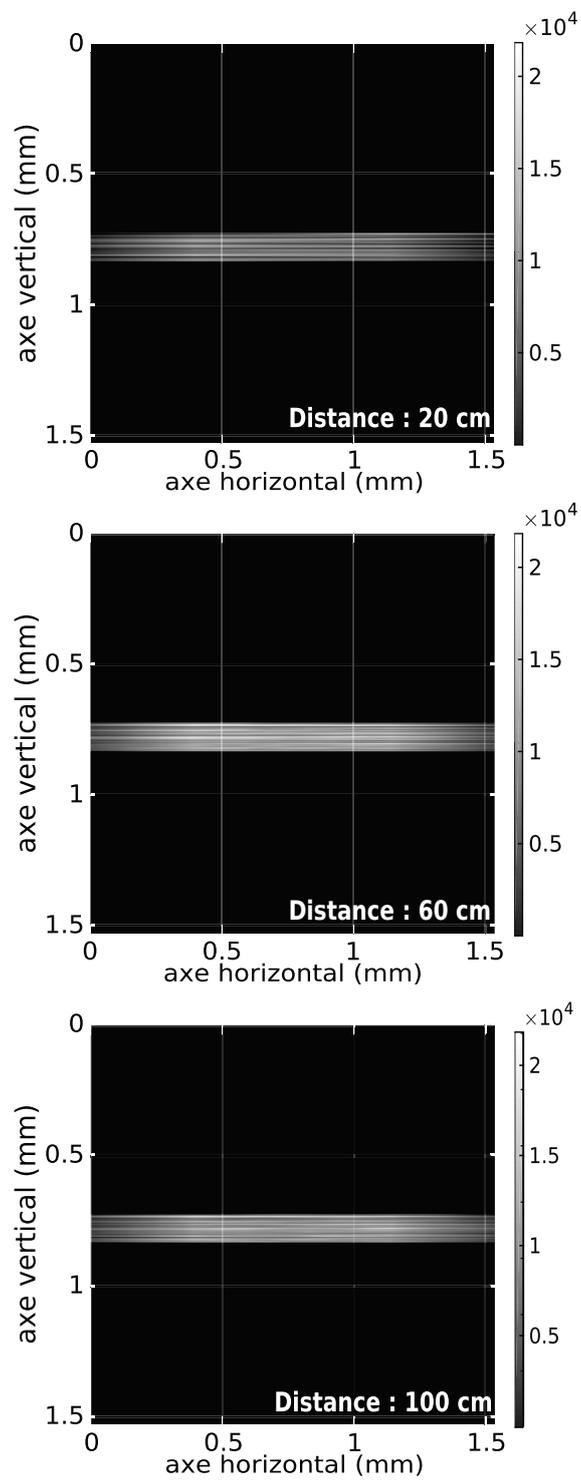


FIGURE 5.13 – Résultats avec les effets de largeur de cohérence partielle de la source aux différentes distances.



# **Chapitre 6**

## **Simulations**



*Limbe d'une feuille où ses multiples nervures produisent des structures périodiques. Cet agencement permet à la feuille un maintien souple du limbe qui doit être exposé à la lumière pour la photosynthèse.*

## 6.1 Introduction

Le chapitre précédent décrivait les modifications apportées au modèle numérique basé sur la théorie de Takagi-Taupin, la modélisation de la cohérence partielle du faisceau et de la propagation. Bien que les résultats expérimentaux d'imagerie par diffraction de Bragg suggèrent de considérer les écarts de période dans la structure multicouche, ce paramètre ne sera pas considéré dans ce chapitre de par sa complexité d'implémentation dans le modèle développé.

Dans ce chapitre nous présentons les simulations effectuées pour établir les cas limites d'utilisation du modèle et tenter de déterminer les relations entre les défauts de hauteur et les lignes d'intensité. Ainsi, la première partie s'attachera à décrire les simulations de cas simples. Cela a permis d'étudier les réponses du modèle et de vérifier les contraintes numériques. Avec les résultats de défauts simples, nous proposerons un procédé de reconstruction de défaut de hauteur à l'origine des lignes d'intensité, en utilisant les mesures de front d'onde par la méthode des tavelures en champ proche. Les résultats de reconstruction de défaut de hauteur nous conduiront à conclure sur le modèle et sur la considération de ce type de défaut dans les multicouches.

Enfin, nous appliquerons les données de mesure de topographie par interférométrie Fizeau pour simuler une multicouche avec le modèle de Takagi-Taupin et la propagation de l'onde réfléchie (avec la détection de l'intensité résultante dans un détecteur), au moyen des modules complémentaires décrits dans le chapitre précédent (figure (5.9)).

## 6.2 Préambule aux simulations

Un aspect important et complexe des simulations de propagation des ondes dans une multicouche avec le modèle numérique des équations de Takagi-Taupin est l'échantillonnage. En effet, le calcul de la propagation du champ d'onde dans la multicouche s'effectue point par point, définis par un échantillonnage du milieu (ici la structure périodique multicouche). L'échantillonnage du milieu de propagation définit la distance entre un point de calcul et son voisin. Or, cette distance inter-point dans toutes les directions doit être inférieure à la distance d'extinction, typiquement de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$  [85]. La distance d'extinction est la distance de propagation dans un milieu qui est nécessaire à l'extinction de l'onde incidente par absorption et/ou réflexion. Nous choisissons notre échantillonnage de manière à avoir une distance inter-point correspondante à  $0.1 \mu\text{m}$ . Notre multicouche de 10 mm de longueur se compose alors de  $10^6$  points à multiplier par le nombre de points nécessaires pour l'échantillonnage de l'épaisseur de la multicouche. Même si un nombre de points moins important est possible, il n'en reste pas moins très grand ( $10^5$  points au minimum). Cela constitue une limite à la dimension géométrique des multicouches que nous pouvons simuler. En effet, l'angle rasant de réflexion des miroirs multicouches oblige à considérer des longueurs de miroirs supérieures au millimètre pour obtenir un faisceau réfléchi suffisamment grand pour pouvoir observer des lignes d'intensité au niveau du détecteur. Les fonctions de défaut de hauteur obtenues expérimentalement ont un échantillonnage fixé par la résolution de l'instrument de mesure. Ces fonctions de hauteur doivent généralement être sur-échantillonnées pour obtenir le nombre de points nécessaire aux simulations. Un sous-échantillonnage des résultats doit ensuite être appliqué pour retrouver le même échantillonnage que la fonction de hauteur initiale. Ce sous-échantillonnage peut s'effectuer par différents processus (régression linéaire, moyenne, sélection de la valeur initiale, centrale ou finale). Tous les résultats de simulation du modèle numérique des équations de Takagi-Taupin présentés dans ce chapitre, à l'exception de la figure (6.3), ont été sous-échantillonnés, en sélectionnant la valeur finale.

## 6.3 Simulation de défaut simple

Dans les simulations suivantes de défaut de hauteur simple, nous avons étudié des profils de hauteur en forme de marche (fonction porte  $\Pi$ ) ou de

forme sinusoïdale, avec différents paramétrages d'amplitude et de largeur de défaut de hauteur.

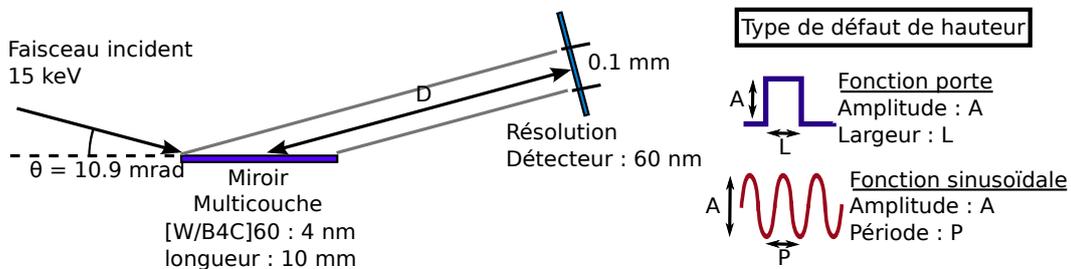


FIGURE 6.1 – Illustration des principaux paramètres des simulations.

### 6.3.1 Descriptif des simulations

La multicouche simulée est composée de 60 bicouches  $[W/B_4C]$  avec des couches de  $2\text{ nm}$  d'épaisseur soit, une période de  $4\text{ nm}$ . L'énergie du faisceau est fixée à  $15\text{ keV}$  et le faisceau est considéré comme cohérent. L'angle de Bragg est positionné à  $10.9\text{ mrad}$ , le rapport de projection entre la surface de la multicouche et le plan de détection est de  $\sim 10^2$ .

La longueur de la multicouche est de  $10\text{ mm}$  et l'image dans le détecteur est d'environ  $0.1\text{ mm}$ . La résolution du détecteur simulé est de  $60\text{ nm}$  soit plus de dix fois meilleure que la résolution d'une caméra FRELON et sa réponse impulsionnelle étant considérée comme ponctuelle (figure (6.1)). Les simulations de multicouche sont produites dans le plan de diffraction (longueur et profondeur). Les simulations de multicouches avec le modèle de Takagi-Taupin génèrent une onde diffractée unidimensionnelle, projetée sur le plan orthogonal à la direction de propagation de l'onde réfléchi et au centre de la multicouche. Ce résultat est éventuellement propagé vers un détecteur unidimensionnel positionné à différentes distances de propagation.

#### Paramètres de défaut et de distance des simulations

Les valeurs résumées dans le tableau suivant sont choisies pour correspondre aux échelles de grandeur des défauts à l'origine des lignes d'intensité et pour tester des cas limites de simulation.

Fonction porte			Fonction sinusoïdale		
Amplitude ( <i>nm</i> )	Largeur ( <i>mm</i> )	Distance ( <i>mm</i> )	Amplitude ( <i>nm</i> )	Période ( <i>mm</i> )	Distance ( <i>mm</i> )
10	5	20	10	5	20
5	1	60	5	1	60
1	0.5	100	1	0.5	100
0.5	0.1		0.5	0.1	
0.1	0.075		0.1		

Pour éviter un trop grand nombre de simulations nous avons sélectionné cinq amplitudes de défaut, cinq largeurs (soit un échantillonnage faible comparé aux variations d'échelle de grandeur) et trois distances de propagation. Malgré ce nombre réduit de points de mesure, pour chaque paramètre que nous avons fait varier, cela constitue vingt-cinq résultats de simulation. Seuls certains sont présentés pour illustrer nos conclusions avec les figures (6.2) et (6.4) pour la fonction porte et figures (6.5) et (6.6) pour la fonction sinusoïdale.

### 6.3.2 Simulation avec défauts de type créneau

#### Simulation de la multicouche

Les résultats de simulation de Takagi-Taupin montrent (figure (6.2)) qu'un défaut en forme de créneau de hauteur, situé au centre de la multicouche, produit à ses extrémités des instabilités sur l'intensité et sur la phase. Ces instabilités sont comparables à un effet de bord (régime transitoire) dont l'origine est la discontinuité de fonction de hauteur de la structure multicouche.

A l'exception de ces instabilités, le défaut de hauteur appliqué sur la multicouche ne modifie pas l'intensité réfléchi, tandis que la phase est modifiée (figure (6.2), courbes rouges). On remarque que la fonction de phase suit la forme de la fonction de hauteur de défaut. Ces observations sont vraies pour toutes les valeurs d'amplitude et de largeur que nous avons simulées, mais aussi pour tous les paramétrages possibles.

Or, les instabilités produites limitent la largeur minimale du défaut que nous pouvons simuler. En effet, plus la discontinuité de la fonction de hauteur est grande, plus les instabilités de phase et d'intensité sont importantes, et le régime transitoire est plus grand. Dans le cas d'une largeur de défaut plus petite que la zone de transition, le résultat sera biaisé comme pour le cas des figures (6.2.c) et (6.2.d).

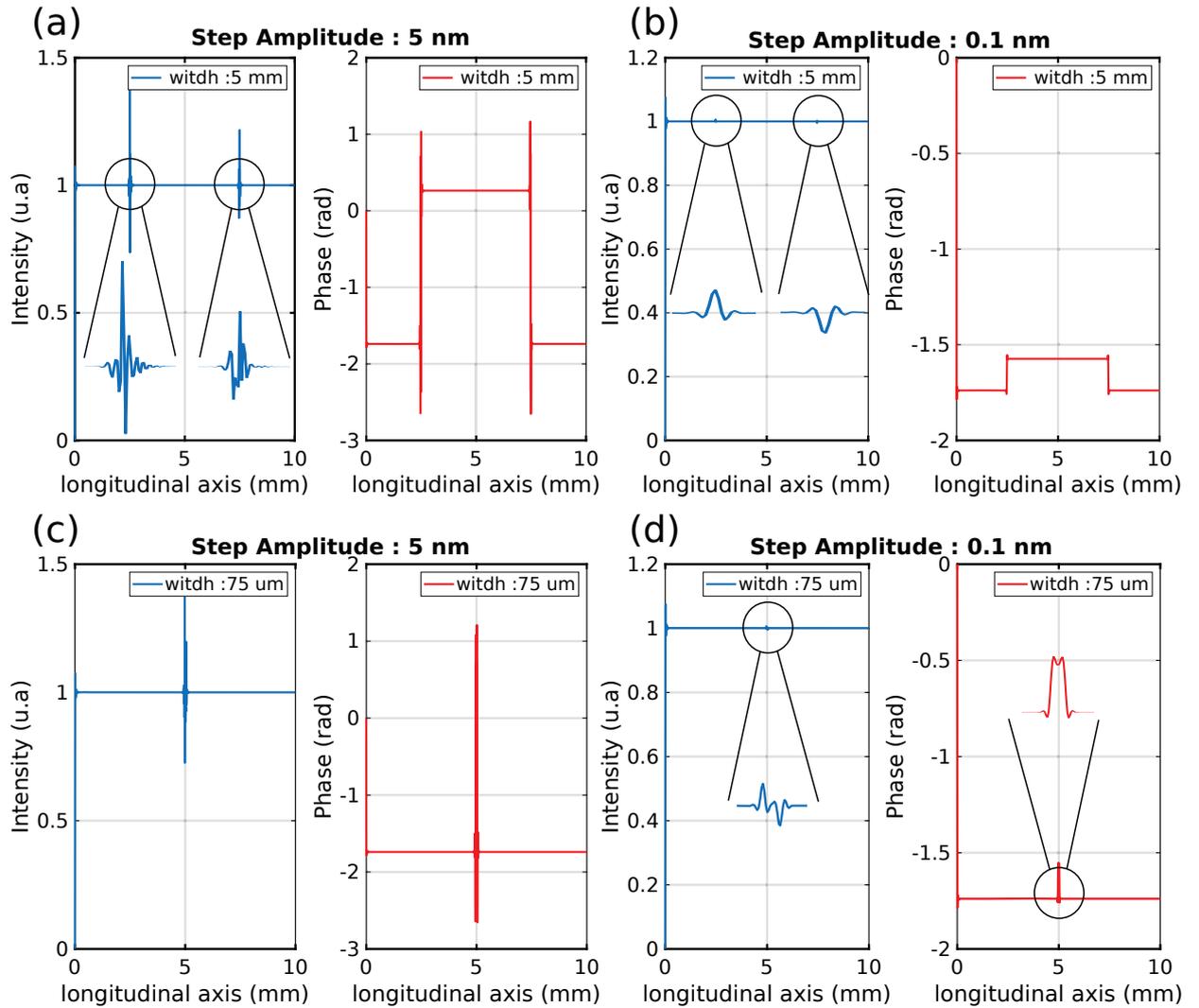


FIGURE 6.2 – (a),(b), (c) et (d) sont les résultats de simulation avec les équations de Takagi-Taupin des défauts de forme marche de hauteur avec différents paramètres (amplitude, largeur). La multicouche considérée est  $[W/B_4C]_{60}$ , 4 nm d'une longueur de 10 mm avec le défaut positionné au centre. Les courbes ont respectivement pour paramètres d'amplitude ( $H$ ) et de largeur ( $l$ ) : ( $H = 5 \text{ nm}; l = 5 \text{ mm}$ ), ( $0.1 \text{ nm}; 5 \text{ mm}$ ), ( $5 \text{ nm}; 75 \mu\text{m}$ ), ( $0.1 \text{ nm}; 75 \mu\text{m}$ ).

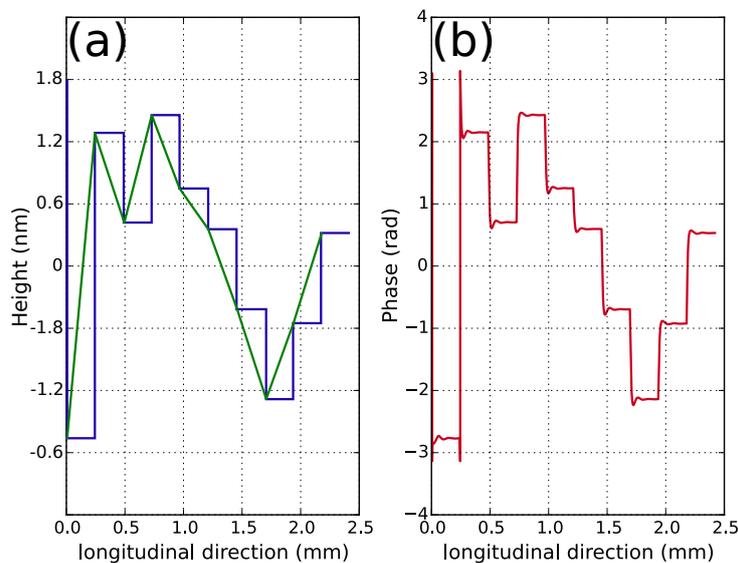


FIGURE 6.3 – (a) est un échantillon de profil de hauteur de structure multicouche obtenu par la méthode des tavelures en champ proche (courbe verte). La résolution initiale est de  $250\ \mu\text{m}$  mais un sur-échantillonnage doit être réalisé pour la simulation. Celui-ci est effectué en répliquant les points existants et il transforme la courbe verte en une série de fonction porte (courbe bleue). (b) présente la phase résultante pour le profil de hauteur sur-échantillonné (courbe bleue). Pour chaque marche de hauteur, la phase résultante présente une zone d'instabilité, puis une zone établie où une valeur de phase est clairement identifiable.

### Discussion sur les instabilités de la simulation

Le cas de défaut de hauteur de forme créneau est un cas simple mais extrême du point de vue de la discontinuité de la fonction de hauteur. Les simulations avec des gradients de hauteur trop importants auront des instabilités importantes et des résultats biaisés. Or, nos simulations utilisent une fonction de hauteur discontinue, car elle doit être échantillonnée pour les calculs numériques. Plus l'échantillonnage est grand, plus les discontinuités de la fonction s'affaiblissent. Pour vérifier que les discontinuités de la fonction de hauteur ne produisent pas d'instabilité problématique, une simulation avec un profil de hauteur obtenue avec la méthode des tavelures a été effectuée. La figure (6.3.b) montre cet exemple de simulation où l'évolution de la zone de transition dans les résultats de simulation est visible. La résolution initiale (de la courbe verte) est de  $250\ \mu\text{m}$  et le sur-échantillonnage de la fonction de hauteur, que nous avons mentionné en préambule des simulations, est appliqué (courbe bleue). La fonction de

hauteur sur-échantillonnée figure (6.3.a) prend ici la forme d'une somme de fonctions portes (courbe bleue). Le résultat de la phase de l'onde réfléchie figure (6.3.b) est présenté avant d'appliquer le sous-échantillonnage des résultats. Le résultat obtenu montre des zones de transition (d'instabilité) pour chaque "saut" de hauteur (discontinuité entre les fonctions portes, avec les ordres de grandeur des gradients de hauteur que nous obtenons expérimentalement). Les instabilités à chaque fonction porte s'estompent pour tendre vers une zone établie, avec une valeur constante. Lors de l'étape de sous-échantillonnage, il faut éviter de sélectionner les valeurs de phase qui sont dans les zones de transition car elles sont fausses. Une sélection des valeurs de phase pour le sous-échantillonnage (correspondant soit à la valeur moyenne sur la largeur des marches, soit à la valeur finale) permet de s'affranchir des instabilités. Cela est vrai dans le cas où les discontinuités de la fonction de hauteur des défauts est importante. Si le sur-échantillonnage des simulations est effectué avec une interpolation linéaire, les discontinuités de la fonction de hauteur sont encore plus réduites et l'opération de sous-échantillonnage ne présente aucun risque d'erreur (lié aux instabilités).

C'est pourquoi des fonctions de hauteur issues de topographies expérimentales ou sinusoïdales pourront être appliquées dans notre modèle sans avoir à se préoccuper des instabilités de discontinuité de la fonction de hauteur. Cependant, nous limiterons la résolution des fonctions de hauteur à  $75 \mu m$ , car cela correspond globalement à la projection d'un pixel de la caméra FRELON (voir Chapitre 3) projeté sur une multicouche  $[W/B_4C]$ ,  $4 nm$  pour réfléchir un faisceau X avec une énergie de  $15 keV$ .

### **Intensité produite avec un défaut de type créneau de hauteur**

Les ondes réfléchies résultantes des simulations de multicouche avec un défaut de type marche de hauteur sont ensuite propagées. Seuls les résultats obtenus avec les paramétrages de la figure (6.2) sont illustrés sur la figure (6.4).

Les résultats de propagation présentés sont obtenus avec une apodisation sur les bords et pour une résolution de détecteur de  $60 nm$ .

Les résultats de propagation montrent un mélange d'oscillations d'intensité avec des comportements différents selon les paramétrages de simulation. Parmi les contributions aux variations d'intensité visibles sur les bords, il y a probablement des effets d'interférence réels, du bruit de calcul et de l'effet de Gibbs malgré l'apodisation des bords.

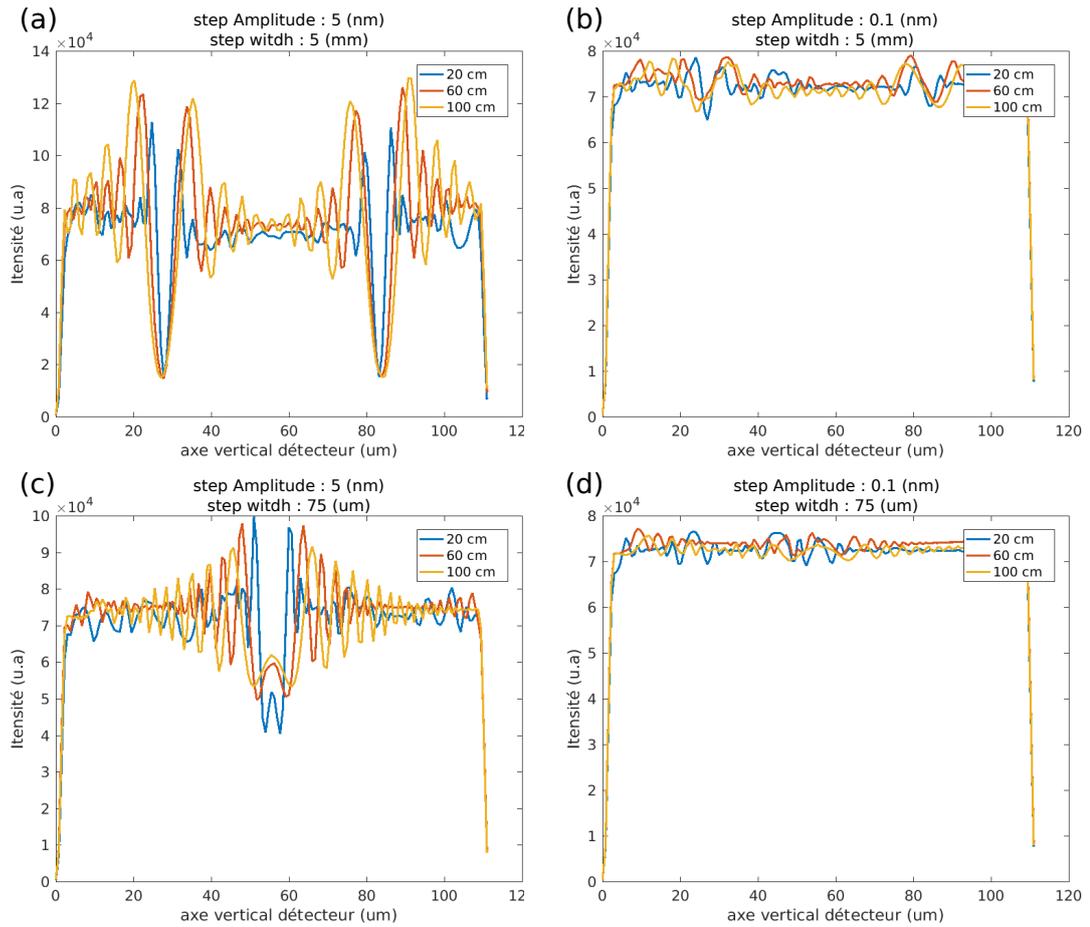


FIGURE 6.4 – (a),(b),(c) et (d) sont respectivement les résultats de simulation de propagation vers un détecteur des ondes réfléchies de la figure (6.2). Le détecteur unidimensionnel a une résolution de 60 nm et une fonction d'étalement de point de forme gaussienne avec une largeur à mi-hauteur de  $1.5 \mu\text{m}$ .

La comparaison de ces profils d'intensité sur l'onde réfléchi par la multicouche, pour chaque distance, montre globalement les mêmes variations d'intensité, c'est-à-dire des oscillations principales localisées au niveau des instabilités relevées. Cela se voit clairement sur les courbes de la figure (6.4.a)(6.4.c) et se vérifie aussi sur les figures (6.4.b) et (6.4.d) où les oscillations principales sont moins prononcées. Il n'y a donc pas de changement fort de profil d'intensité avec la distance de propagation.

Le contraste d'intensité est plus important dans les profils des figures (6.4.a) et (6.4.c) où l'amplitude du défaut est plus grande. Cela est consistant avec l'amplitude des instabilités obtenues sur les simulations des défauts où les instabilités augmentent avec l'amplitude du défaut.

La largeur du défaut, quant à elle, modifie le profil d'intensité de par la modification de la position des bords de ce défaut, c'est-à-dire là où les instabilités de simulation de la multicouche sont positionnées.

Dans le cas de défauts de largeur supérieure à  $5\text{ nm}$ , nous notons que les oscillations d'intensité du bord du défaut s'affaiblissent vers le centre du défaut. Ce point montre que les variations d'intensité sont produites par des écarts de phase que l'on trouve sur les bords du défaut. Au centre de ce type de défaut, il n'y a pas suffisamment d'écart de phase pour créer du contraste. Nous remarquons aussi que les variations d'intensité dans nos résultats sont produites par les contributions mélangées des écarts de phase induites par le défaut de hauteur et par les instabilités.

### 6.3.3 Simulation avec défaut sinusoïdal

#### Simulation de la multicouche

remarque importante : Les résultats sur la phase réfléchi par la multicouche, présentés dans la figure suivante, sont congrus Modulo  $\equiv 2\pi$ .

Les simulations de défauts de hauteur sinusoïdaux présentées figure (6.5) montrent des oscillations d'intensité et de phase qui diffèrent selon les paramètres de défaut. La première observation concerne l'absence d'instabilité dans les résultats, à l'exception inévitable du bord de la multicouche. Un contraste d'intensité réfléchi à la surface de la multicouche se distingue clairement pour les amplitudes de défaut de  $5\text{ nm}$  (figure (6.5.a), (6.5.c)), tandis que pour une amplitude de  $0.1\text{ nm}$  (figure (6.5.b), (6.5.d)) celui-ci est négligeable même si un faible contraste est visible. Cela est identique aux observations sur les défauts de hauteur précédents. Ici, ce ne sont pas des instabilités mais des variations locales d'intensité réfléchi en fonction du

gradient de hauteur et par conséquent de la variation d'angle d'incidence. L'augmentation de l'amplitude de défaut de la fonction sinusoïdale pour une même période augmente aussi les gradients de hauteur. C'est pourquoi le contraste d'intensité réfléchi s'accroît avec la hauteur du défaut, en vertu de la courbe de réflectivité angulaire de la multicouche. La périodicité des oscillations d'intensité correspond à la période de défaut de hauteur appliquée.

Pour des amplitudes de défaut de hauteur de  $5 \text{ nm}$  (on rappelle que la phase est congrue Modulo  $\equiv 2\pi$ ), la phase de l'onde réfléchi est plus importante que pour les défauts d'amplitude  $0.1 \text{ nm}$ . Cela est identique aux simulations des défauts présentés précédemment. Cependant, nous remarquons que la fréquence d'oscillation de la phase visible sur les figures (6.5.a) et (6.5.c) apparaît supérieure pour une amplitude de défaut plus faible (figures (6.5.b) et (6.5.d)). En réalité, la fréquence des profils de phase est la même que la fréquence de la fonction de défaut de hauteur sinusoïdale quels que soient les paramètres de défaut. Cela se distingue clairement pour les amplitudes de défaut de  $0.1 \text{ nm}$  mais aussi pour les défauts de  $5 \text{ nm}$  si on compte le nombre de motifs qui se répètent.

Ce point est important car l'intensité réfléchi dans un détecteur, après propagation, s'obtient par la sommation des amplitudes complexes des ondes ; la contribution de la phase dans l'intensité du faisceau réfléchi est alors effectivement congrue à  $2\pi$ . Cela peut alors produire une démultiplication des fréquences spatiales de la phase, comme illustré sur les figures (6.5.a) et (6.5.c). C'est également le cas pour l'intensité du faisceau réfléchi.

### **Intensité produite avec des défauts de hauteur sinusoïdaux**

On observe sur la figure (6.6) que l'onde réfléchi par une multicouche avec des défauts de hauteur sinusoïdaux produit des variations d'intensité pour chaque distance de propagation. Dans le cas d'une d'amplitude de  $5 \text{ nm}$  (figure (6.6.a), (6.6.c)), ces variations sont désordonnées tandis que des amplitudes de défaut moins importantes produisent des oscillations d'intensité régulières (figure (6.6.b), (6.6.d)). La lecture des résultats de propagation pour les défauts de hauteur d'amplitude  $5 \text{ nm}$  est difficile. Cependant, on peut associer l'allure désordonnée de ces résultats à la démultiplication des fréquences spatiales de la phase et à la présence de contraste d'intensité réfléchi à la surface de la multicouche (comme vu précédemment).

On constate deux comportements différents avec la distance de propaga-

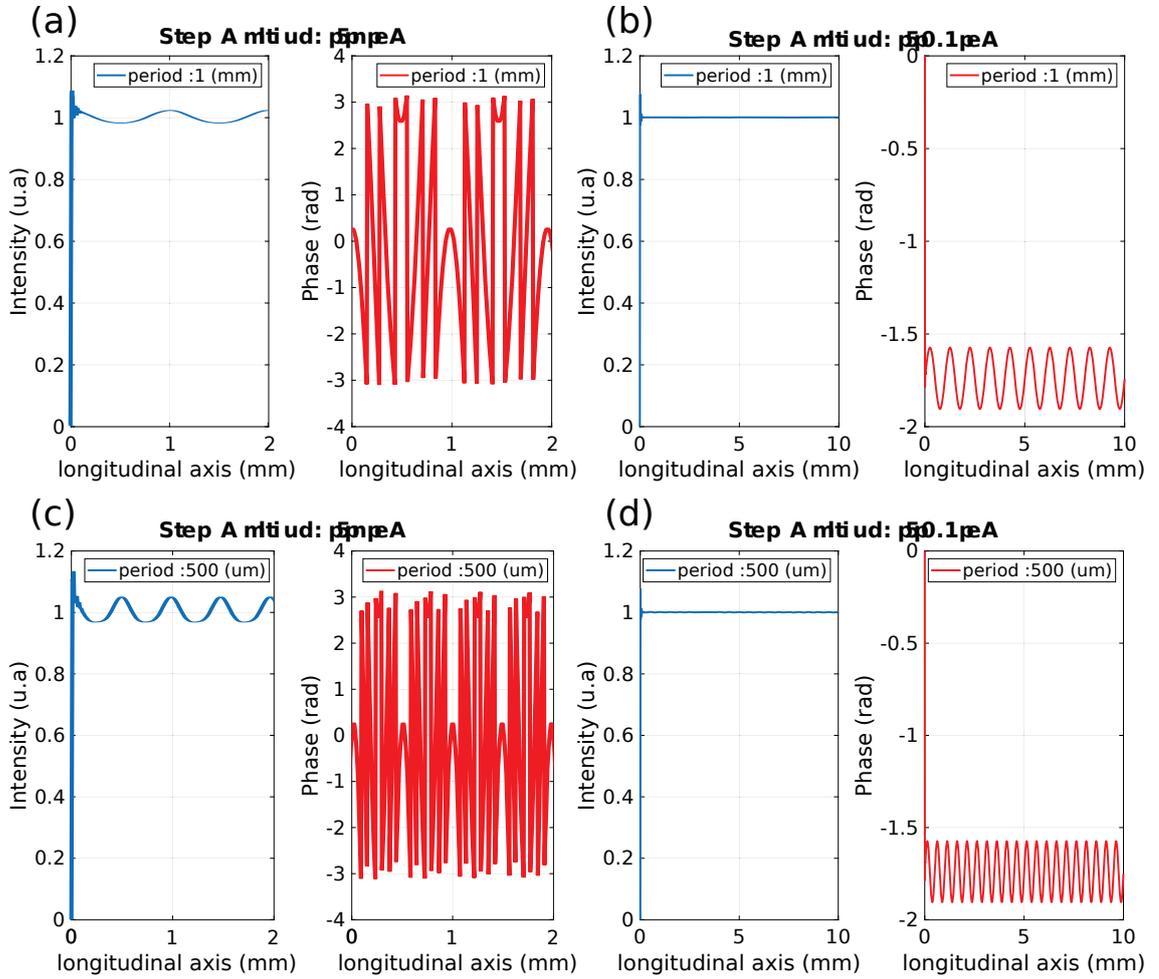


FIGURE 6.5 – (a),(b),(c) et (d) sont les résultats de simulation, avec les équations de Takagi-Taupin, des défauts de hauteur sinusoidaux avec différentes amplitudes et périodes. Pour plus de lisibilité sur (a) et (c), seule une longueur de multicouche de 2 mm est représentée car le comportement est identique sur toute la longueur de la multicouche. La multicouche considérée est  $[W/B_4C]_{60}$ , 4 nm d'une longueur de 10 mm, avec les défauts présents sur toute la longueur de la multicouche. Les courbes ont respectivement les paramètres d'amplitude ( $H$ ) et de période ( $p$ ) suivants : ( $H = 5 \text{ nm}; p = 1 \text{ mm}$ ), ( $0.1 \text{ nm}; 1 \text{ mm}$ ), ( $5 \text{ nm}; 500 \mu\text{m}$ ), ( $0.1 \text{ nm}; 500 \mu\text{m}$ ). Les résultats présentés de la phase réfléchié par la multicouche, sont congrus Modulo  $\equiv 2\pi$ .

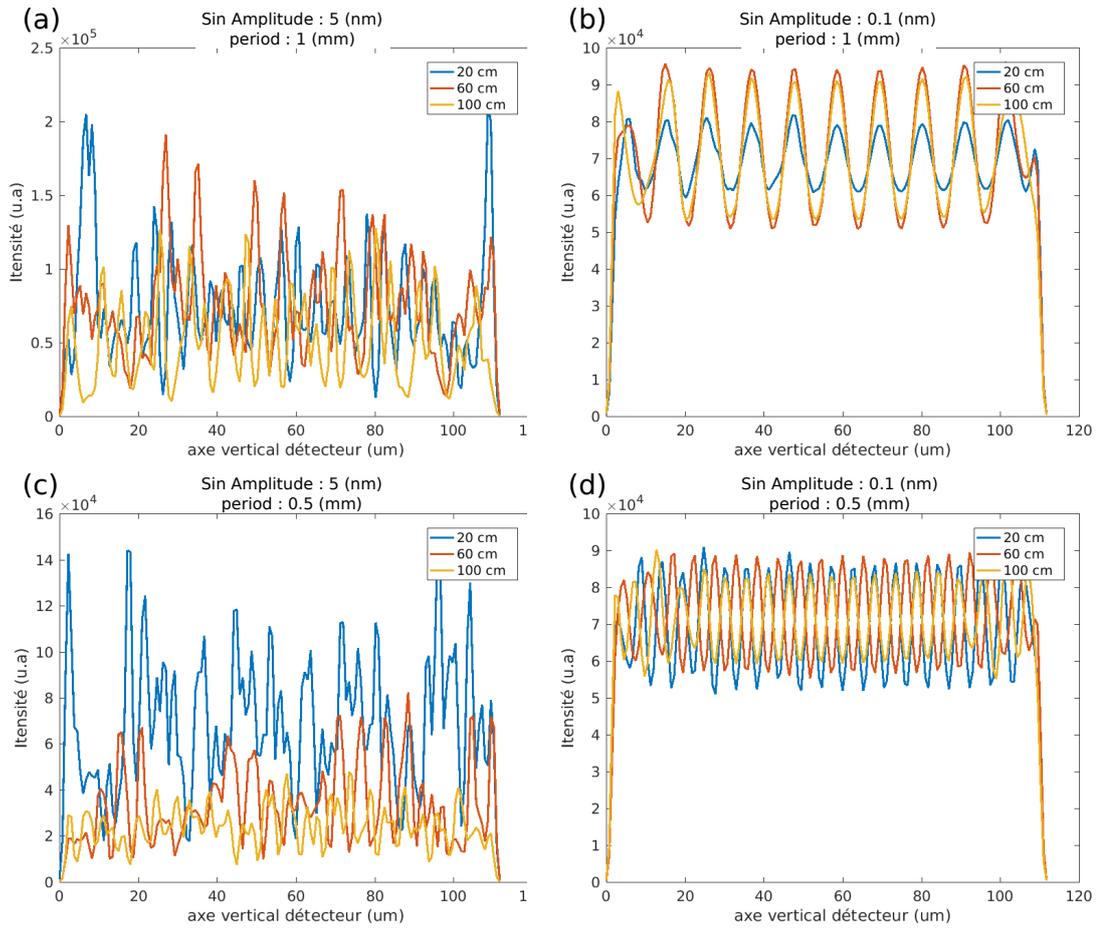


FIGURE 6.6 – (a),(b),(c) et (d) sont respectivement les résultats de propagation dans un détecteur des ondes réfléchies de la figure (6.5). Le détecteur uni-dimensionnel a une résolution de 60 nm et une fonction d'étalement de point de forme gaussienne avec une largeur à mi-hauteur de 1.5  $\mu\text{m}$ . Les résultats des défauts d'amplitude 5 nm montrent des variations d'intensité désordonnées qui ne semblent pas provenir d'un bruit de calcul car plusieurs points intermédiaires sont présents entre les extremas.

tion sur les figures (6.6.b) et (6.6.d). En effet, le contraste d'intensité varie avec la distance, dans le cas d'une période de défaut de  $1\text{ mm}$ , contrairement au cas d'une période de défaut de  $0.5\text{ mm}$ .

La fréquence spatiale des oscillations d'intensité, selon la distance, ne change pas et le nombre de périodes d'oscillation d'intensité est respectivement de dix et de vingt pour les périodes de défaut de  $1\text{ mm}$  et  $0.5\text{ mm}$ . Les fréquences spatiales de défaut de hauteur, d'oscillation de phase et d'oscillation d'intensité, projetées dans un même plan (plan de détection ou de la surface de la multicouche), s'accordent entre elles. Ce constat se vérifie pour des amplitudes de défaut qui ne produisent pas de variation de phase trop importante (à priori des amplitudes comprises dans une plage de  $2\pi$ ).

Les oscillations d'intensité sont dans les figures (6.6.b) et (6.6.d), respectivement en phase pour les trois distances, et en opposition de phase selon les distances.

Pour mieux comprendre ce phénomène, nous avons effectué une analyse de l'évolution des profils d'intensité, avec la distance de propagation, avec les défauts de hauteur sinusoïdaux d'amplitude  $0.1\text{ nm}$  et des périodes de  $1\text{ mm}$  et  $0.5\text{ mm}$ .

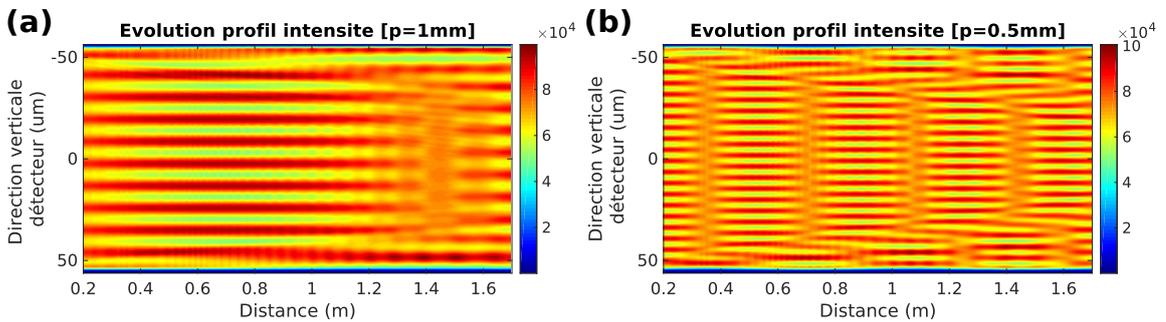


FIGURE 6.7 – (a) et (b) sont l'évolution de l'intensité, simulée dans le détecteur avec la distance, pour la multicouche avec des défauts de hauteur sinusoïdaux d'amplitude  $0.1\text{ nm}$  pour les périodes  $p = 0.5\text{ mm}$  et  $1\text{ mm}$ . Dans ces deux cas, on observe des échanges de position des maxima d'intensité avec la distance (exemple en (b), entre les positions des maxima à la distance  $m \approx 0.5\text{ m}$  et  $\approx 0.9\text{ m}$ ). Les profils (verticaux) d'intensité sont décalés verticalement d'une demi période (opposition de phase) à des distances régulières.

## Étude des intensités simulées avec les distances de propagation

La figure (6.7) représente l'évolution des profils d'intensité avec la distance de propagation. Elle permet de visualiser des passages en opposition de phase des oscillations d'intensité selon la distance, à la fois pour les périodes de défaut de  $1\text{ mm}$  et de  $0.5\text{ mm}$ . Ces changements en opposition de phase (décalage vertical d'une demi période des profils d'intensité) se répètent à des distances régulières, comme sur la figure (6.7.b) qui évoque fortement l'effet Talbot que nous avons décrit dans le chapitre 5, figure (5.6). De plus, nous constatons que les profils d'intensité effectuent un seul changement de phase dans cette plage de distance de propagation pour une période de défaut de  $1\text{ mm}$  (alors que nous en observons quatre pour une période de défaut divisée par deux). Sachant que la distance de Talbot est  $Z_t = 2p^2/\lambda$ , avec  $p$  la période de l'objet et  $\lambda$  la longueur d'onde, l'évolution des motifs d'intensité avec la distance de propagation ne reproduit pas exactement les motifs de Talbot de la figure (5.6). Les situations seraient donc différentes. Ici, les motifs d'intensité résultent d'effet de phase, tandis que l'effet de Talbot de la figure (5.6) s'obtient avec un objet d'intensité pur.

La distance de Talbot théorique, pour une période de défaut de  $0.5\text{ mm}$  projeté dans le plan de détection sous un angle de réflexion  $\theta = 10.9\text{ mrad}$  et de longueur d'onde  $\lambda = 0.826\text{ \AA}$  est de  $0.719\text{ m}$ . Cela s'accorde avec les distances de propagation nécessaires pour retrouver un accord de phase des oscillations d'intensité, soit deux passages en opposition de phase.

La figure (6.8.a) montre un agrandissement de la zone de transition figure (6.7.a). La comparaison entre les profils d'intensité de la zone de transition et de la zone établie (figure (6.8.b)) montre que le contraste diminue dans la zone de transition, mais aussi que la fréquence spatiale d'oscillation de la courbe bleue change localement dans les zones encadrées des figures (6.8.a) et (6.8.b). A l'exception de ces zones de transition, les fréquences spatiales d'oscillation des intensités ne changent pas.

### 6.3.4 Comparaison des intensités mesurées avec les distances de propagation

La figure (6.9.a) représente l'évolution d'un profil vertical des motifs d'intensité mesurée expérimentalement dans un détecteur. La taille verticale du faisceau réfléchi est d'environ  $1.3\text{ mm}$  et la plage de déplacement du détecteur est d'environ  $1\text{ m}$ . La configuration expérimentale est identique aux cas simulés à l'exception du détecteur qui a une résolution de

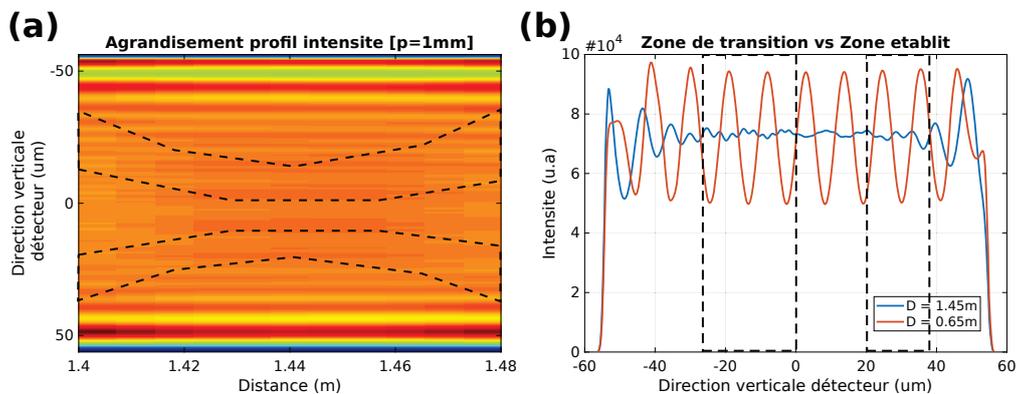


FIGURE 6.8 – (a) est un agrandissement de la zone de transition de la figure (6.7.a). (b) représente un profil d'intensité à la distance de propagation  $D = 0.65\text{ m}$  où les oscillations d'intensité ne changent pas et un profil d'intensité à la distance  $D = 1.45\text{ m}$  dans la zone de passage, en opposition de phase des oscillations d'intensité.

$0.75 \times 0.75\ \mu\text{m}$ . Le faisceau réfléchi possède des lignes d'intensité dont la visibilité et le contraste augmentent avec la distance de propagation. Au centre du faisceau réfléchi il existe aussi des motifs qui apparaissent et disparaissent selon la distance de propagation. Cependant, ceux-ci ne sont pas associés aux lignes d'intensité que nous étudions. Les zones autour des distances de propagation de  $0.3\text{ m}$  et de  $0.83\text{ m}$  s'apparentent à des zones de transition semblables à celles que nous observons avec les simulations. En réalité ce sont les effets visibles des injections d'électrons dans l'anneau de stockage du synchrotron.

La figure (6.9.b) montre la contribution principale dans le spectre fréquentiel des oscillations d'intensité mesurées. Nous observons que cette contribution est pratiquement invariante avec la distance de propagation et a une période de  $22\ \mu\text{m}$  dans le plan de détection. La distance de Talbot associée à cette période est  $11.72\text{ m}$ . Cela explique l'absence de changement important de motif d'intensité réfléchi pour la plage des distances disponibles pour cette mesure.

La période du fondamental obtenue expérimentalement est différente de celles que nous avons simulées. Cependant, les comportements fréquentiels des oscillations d'intensité simulées (figure (6.7)) ne sont pas contredits par les résultats expérimentaux (figure (6.9)). Dans les deux cas nous constatons une invariance des fréquences. De ce point de vue, les résultats de mesure des motifs d'intensité réfléchis et nos simulations de défauts de hauteur sinusoidaux sont cohérents.

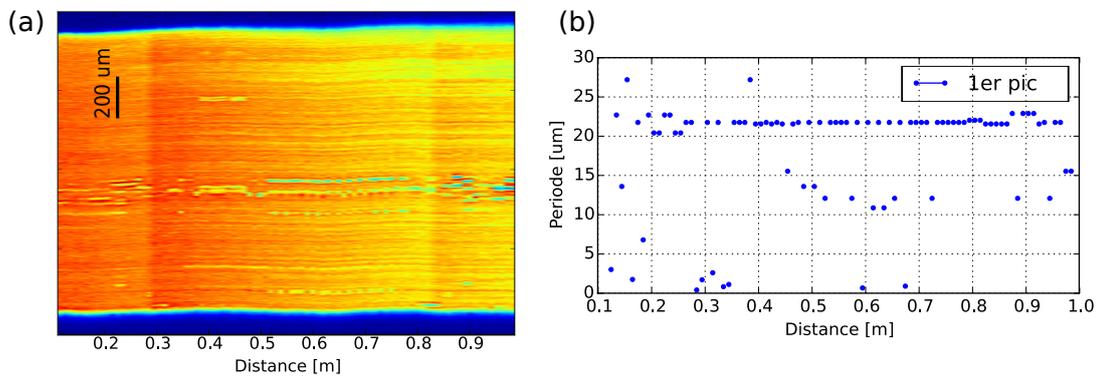


FIGURE 6.9 – (a) est l'évolution du profil vertical central de l'intensité mesurée expérimentalement pour la multicouche 091116 (énergie du faisceau : 15 keV, angle de réflexion : 10.9 mrad). (b) est l'évolution de la période des contributions périodiques principales (pic principal du spectre de période spatiale d'oscillations d'intensité autrement dit la période du fondamental) dans l'intensité diffractée selon la distance.

### 6.3.5 Conclusion des premières simulations

Les simulations de défaut de forme marche de hauteur ont permis de tester les limites numériques de notre modèle, en particulier pour des fonctions de hauteur avec de fortes discontinuités. Cela a démontré que nous pouvons exploiter les topographies de hauteur obtenues expérimentalement.

Les intensités réfléchies par une multicouche avec ce type de défaut montrent que les variations d'intensité et le contraste augmentent avec l'amplitude du défaut.

Les simulations de défauts de hauteur sinusoïdaux ont montré qu'elles produisent aussi des motifs d'intensité. Ces motifs d'intensité simulés ont des comportements qui s'accordent avec les mesures expérimentales de faisceau réfléchi. Si la topographie des défauts de hauteur est connue, l'ensemble de notre modèle numérique de multicouche et de notre modèle de propagation peut permettre de reproduire la réalité expérimentale. Cette topographie de défaut de hauteur peut être recherchée avec ces modèles, en tentant d'associer la composition spectrale d'oscillation d'intensité à une composition spectrale de défaut de hauteur, pour une hauteur ne produisant pas d'écart de phase supérieur à  $2\pi$ . Or, nous avons montré que l'amplitude de défaut de hauteur peut justement démultiplier les fréquences spatiales des motifs d'intensité, si les écarts de phase du faisceau réfléchi sont trop grands. Ce procédé de recherche des défauts de hauteur exige

donc de rechercher et de tester de nombreuses combinaisons possibles du couple de paramètres amplitude et fréquence spatiale décrivant le défaut. De plus, la propagation de l'onde réfléchie étant un processus complexe et non linéaire, les résultats, pour un défaut de hauteur composé de plusieurs fréquences spatiales, sont beaucoup plus complexes à interpréter que les cas simulés précédemment. Ces raisons expliquent pourquoi l'étude des défauts des multicouches par comparaison des simulations avec les intensités mesurées dans un détecteur est très complexe et n'a pas été effectuée de cette manière. En revanche, les résultats de mesure de front d'onde par la méthode des tavelures permettent de s'affranchir de ces difficultés.

## 6.4 Simulations pour la recherche des défauts de hauteur

Notre modèle produit des lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi par une multicouche à partir de défauts de hauteur dans la structure multicouche. Il permet alors de faire le lien entre les lignes d'intensité observées dans le détecteur et les défauts de hauteur du miroir multicouche, en vue de chercher à réduire le phénomène des lignes d'intensité. Il est donc important d'effectuer des simulations pour retrouver les défauts de hauteur de la multicouche qui produisent les motifs d'intensité observés expérimentalement (malgré la complexité de la recherche des défauts de hauteur à partir des motifs d'intensité due à la non linéarité du processus de propagation).

Pour remédier à ce problème et simplifier la recherche des défauts de hauteur, nous proposons d'utiliser les résultats de mesure de front d'onde par la méthode des tavelures en champ proche. Les deux étapes de modélisation sont la propagation du faisceau incident dans la multicouche et la propagation de l'onde réfléchie jusqu'à un détecteur. La méthode des tavelures en champ proche permet d'obtenir la phase de l'onde réfléchie à la surface de la multicouche, c'est-à-dire sans propagation (voir chapitre 2, §2.4.2). Ainsi, les mesures de front d'onde permettent de s'affranchir de l'étape complexe de propagation.

Le problème à résoudre revient alors à faire correspondre les défauts de hauteur (de la structure multicouche simulée), produisant les perturbations de phase obtenues expérimentalement. Pour cela nous proposons un procédé itératif de reconstruction des défauts de hauteur.

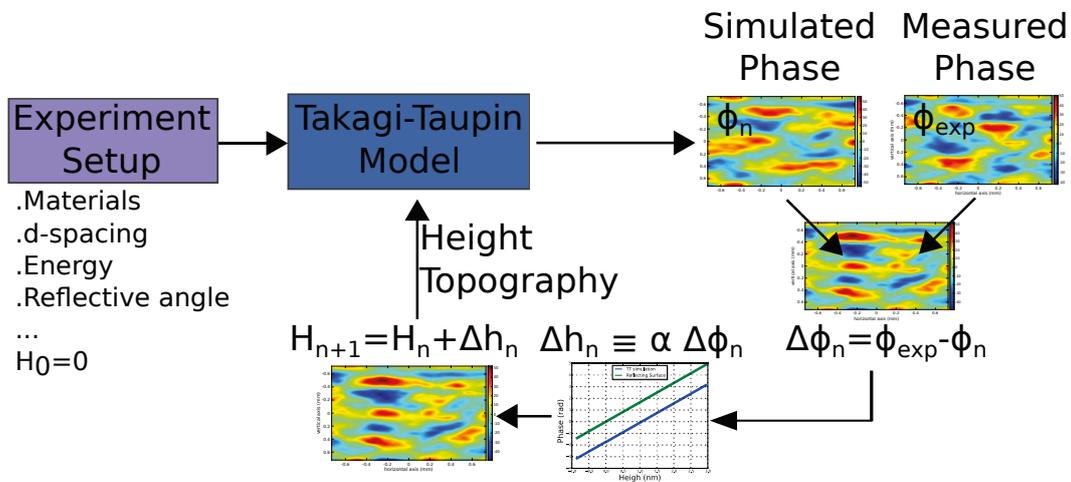


FIGURE 6.10 – Méthode itérative de reconstruction de défaut de hauteur d'une multicouche par utilisation du modèle numérique des équations de Takagi-Taupin et des mesures de front d'onde du faisceau réfléchi.

#### 6.4.1 Procédé itératif de reconstruction de défaut

Le principe des simulations pour la reconstruction des défauts de hauteur de la multicouche est d'appliquer et de modifier les défauts de hauteur à la structure multicouche avec le modèle numérique des équations de Takagi-Taupin, jusqu'à la convergence du résultat de phase de l'onde réfléchie avec celle mesurée par la méthode des tavelures. La figure (6.10) montre la boucle itérative où la configuration expérimentale de la simulation est définie. Cette configuration doit correspondre à celle de la mesure du front d'onde et doit permettre d'effectuer la première étape de simulation avec une topographie de défaut de hauteur initiale  $H_0$  nulle sur toute la multicouche. Le résultat de simulation de la phase réfléchie  $\phi_n$  ( $n$  étant le nombre d'itérations) différenciée à la phase mesurée  $\phi_{exp}$  permet de créer une cartographie de différence de phase  $\Delta\phi_n$ . La différence de phase  $\Delta\phi_n$  doit permettre d'établir des écarts de hauteur de défaut  $\Delta h_n$  à partir d'une relation qui reste à définir et qui sera abordée plus loin. Ces écarts de hauteur de défaut  $\Delta h_n$  avec topographie de défaut de hauteur  $H_n$  permettent de définir la topographie de défaut de hauteur à appliquer pour la prochaine simulation  $H_{n+1}$ .

Ce processus itératif est convergent si la phase réfléchie en fonction de la hauteur du défaut est monotone, c'est-à-dire que la phase réfléchie augmente avec la hauteur de défaut, et ce pour toute hauteur de défaut. Cette remarque est intuitive mais la réponse de phase à un défaut de hauteur

du modèle numérique des équations de Takagi-Taupin n'est pas encore établie. Pour cela, nous avons besoin de connaître la relation qui lie la phase de l'onde réfléchie à l'amplitude de hauteur d'un défaut, comme il est nécessaire de le faire entre  $\Delta\phi_n$  et  $\Delta h_n$  dans la boucle itérative.

Pour obtenir la règle d'équivalence de phase à une hauteur de défaut, nous avons appliqué, un décalage en hauteur à sa structure multicouche parfaite (sans défaut). Ce décalage est donc homogène dans toute la multicouche. Les valeurs de phase des ondes réfléchies ainsi simulées, en fonction du décalage de la structure multicouche, permettent d'obtenir la relation entre la phase et la hauteur de défaut, comme présenté sur la figure (6.11). Ce résultat est obtenu pour des simulations d'une multicouche  $[W/B_4C]_{60}$ , 4 nm avec une énergie de 15 keV (angle de réflexion  $\theta = 10.9$  mrad).

Nous remarquons que la fonction de la phase est linéaire avec la hauteur de défaut, pour  $\phi \in [-\pi; \pi]$  et nous considérerons que cela est vrai pour toute valeur de phase. C'est-à-dire que  $\forall (\Delta\phi; \Delta h) \in \mathbb{R}^2, \exists \alpha = cst$ , tel que  $\Delta h = \alpha \Delta\phi$ .

La relation linéaire entre la phase et la hauteur de défaut laisse supposer que la simulation numérique de la multicouche et de ses défauts de hauteur produit des résultats analogues à ceux d'une surface réfléchissante. En effet, des défauts de hauteur sur une surface réfléchissante produisent des effets de phase proportionnels à la hauteur  $\phi = \frac{4\pi h \sin(\theta)}{\lambda}$  (figure (6.12)). La comparaison sur la figure (6.11) des courbes de phase en fonction de la hauteur des défauts confirme que la réponse du modèle numérique d'une multicouche plate à un décalage vertical de sa structure multicouche correspond à celle d'une surface réfléchissante. Cependant, cette réponse peut être différente pour une multicouche avec des défauts de hauteur, c'est-à-dire avec des gradients de hauteur.

### **Discussion sur l'équivalence entre miroir multicouche et surface réfléchissante**

L'explication d'équivalence que montre la figure (6.11) est simple. Bien que le miroir multicouche utilise la diffraction dans le volume pour réfléchir le faisceau incident, les équations de Takagi-Taupin implémentées correspondent à une multicouche parfaite au sens que nous avons défini dans le chapitre 4. Pour rappel, le cas parfait ou multicouche parfaite correspond à une multicouche avec structure périodique parfaite et des couches parfaitement parallèles. C'est-à-dire que la structure multicouche ne contient aucun défaut et la période des couches est identique en tous points du volume de la multicouche.

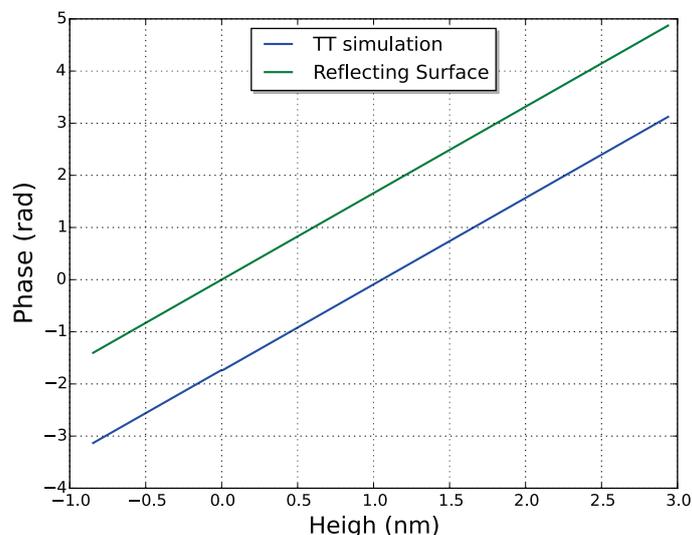


FIGURE 6.11 – Résultat de valeur de phase obtenu pour une onde réfléchi par un miroir multicouche (bleu) et une surface réfléchissante (vert) en fonction de la hauteur d'un défaut. L'écart de phase sur la phase simulée provient de la modification de l'épaisseur de bicouche effectuée dans le modèle numérique (voir chapitre 4), mais n'est pas problématique car la phase est toujours relative.

Alors, le résultat de la réflexion d'une multicouche parfaite est identique à celui d'une surface réfléchissante sans défaut de hauteur. Or, ici la considération de défaut de hauteur dans la structure multicouche ne change pas la structure parfaite, elle constitue seulement un déplacement vertical de cette structure multicouche. C'est pourquoi une multicouche simulée avec un déplacement de sa structure multicouche donne le même résultat qu'une surface réfléchissante dont la surface a un écart de hauteur.

Cependant, le modèle de Takagi-Taupin calcule la propagation de l'onde incidente dans le volume. Cela signifie que les ondes incidentes et réfléchies se propagent de proche en proche (de voxel en voxel) et que l'effet d'un défaut de hauteur peut se superposer à l'effet d'un autre défaut voisin, suffisamment proche. Comme cela n'est pas possible pour une surface réfléchissante, le modèle de Takagi-Taupin peut donner des résultats différents de ceux d'une surface réfléchissante.

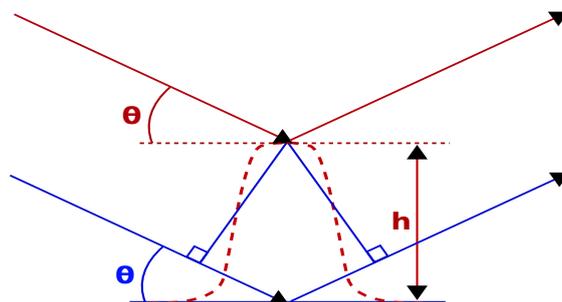


FIGURE 6.12 – La différence de phase dans un faisceau réfléchi par une surface réfléchissante avec un défaut est  $\phi(h) = 4h\pi\sin(\theta)/\lambda$ , où  $h$  est la hauteur du défaut.

## 6.4.2 Résultats miroirs 091116, 091124 et 170906

Les résultats suivants exploitent les résultats de mesure de front d'onde par la méthode de tavelures en champ proche du chapitre 3. Du fait de la linéarité de la relation entre la phase et la hauteur, les observations des différentes variations d'amplitude et de fréquence spatiale de défaut des figures (6.13),(6.15) et (6.17) sont identiques à celles formulées pour les cartographies de phase obtenues avec la méthode des tavelures.

Pour réduire le temps de calcul, le nombre de profils des topographies de hauteur a été réduit à dix en moyennant plusieurs profils. Cela explique l'apparence dégradée des cartographies de phase.

Les principaux paramètres de simulation sont définis par la configuration expérimentale de la mesure du front d'onde du faisceau réfléchi. Pour le miroir multicouche 091116, l'énergie est fixée à  $15\text{ keV}$ , l'angle d'incidence est de  $11.0\text{ mrad}$ . Avec le miroir 091124, l'énergie est aussi fixée à  $15\text{ keV}$  et l'angle d'incidence expérimental est de  $11.1\text{ mrad}$ . La multicouche 170906 est illuminée avec une énergie de  $17\text{ keV}$ , ( $\lambda = 0.7293\text{ \AA}$ ), l'angle d'incidence est de  $14.8\text{ mrad}$ . Les effets de cohérence partielle du faisceau sont déjà présents dans les mesures du front d'onde; pour ne pas prendre en compte deux fois les effets de cohérence, la simulation ne doit pas simuler un faisceau incident partiellement cohérent (mais un faisceau cohérent).

### miroir 091116

Le résultat de simulation de la multicouche 091116 avec les défauts de hauteur de la figure (6.13) est présenté figure (6.14). L'intensité réfléchie à la surface de la multicouche présente un faible gradient continu dans la

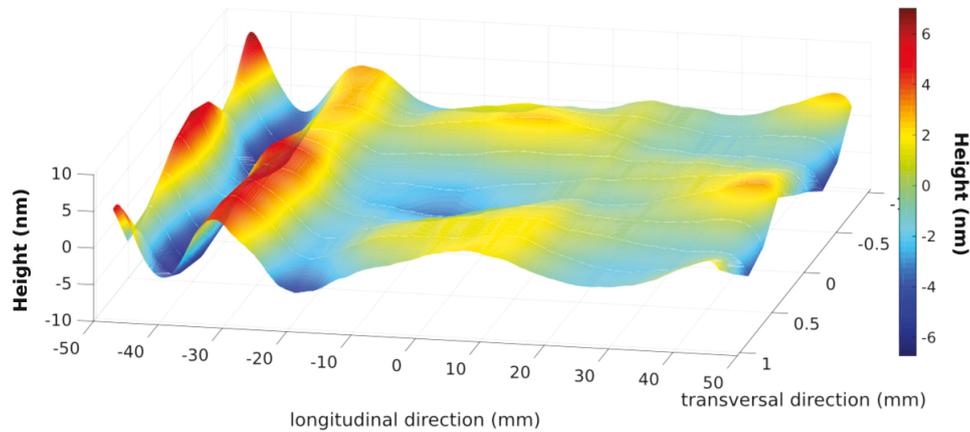


FIGURE 6.13 – Topographie de hauteur reconstruite en utilisant la relation phase-hauteur de la figure (6.11) à partir des valeurs de phase obtenues par mesure des tavelures en champ proche de la multicouche 091116.

direction longitudinale (la différence d'intensité maximale est de 1%). Sur la phase de l'onde réfléchie à la surface du miroir 091116, nous retrouvons la même cartographie de phase que celle obtenue expérimentalement (et avec la réduction du nombre de profils). Cela se vérifie en particulier en comparant les profils centraux de mesures de tavelures et de simulations, où les deux courbes sont identiques. La convergence a été obtenue avec une seule itération.

#### **miroir 091124 et 170906**

De la même manière que pour la multicouche 091116, les défauts de hauteur illustrés figures (6.15) et (6.17) ont été appliqués aux miroirs respectifs et les résultats des simulations sont donnés figures (6.16) et (6.18). Les intensités réfléchies à la surface de ces multicouches ne sont pas constantes. En effet, des oscillations périodiques sont identifiables pour la multicouche 091116 dans la direction longitudinale avec une amplitude d'oscillation inférieure à 1% de l'intensité moyenne réfléchie. Tandis que celle réfléchie par la multicouche 170906 est encore plus faible (inférieure à 1% de l'intensité réfléchie moyenne) et est plus aléatoire. La présence de ces faibles variations périodiques peut s'expliquer pour le miroir 091124 par l'amplitude des défauts de hauteur qui est plus importante que dans la multicouche 091116. Cela est donc cohérent avec la qualité de substrat utilisé sous cette multicouche, qui est de qualité inférieure, comparé à la multicouche 091116. Cependant, cette explication ne semble pas être vraie pour la mul-

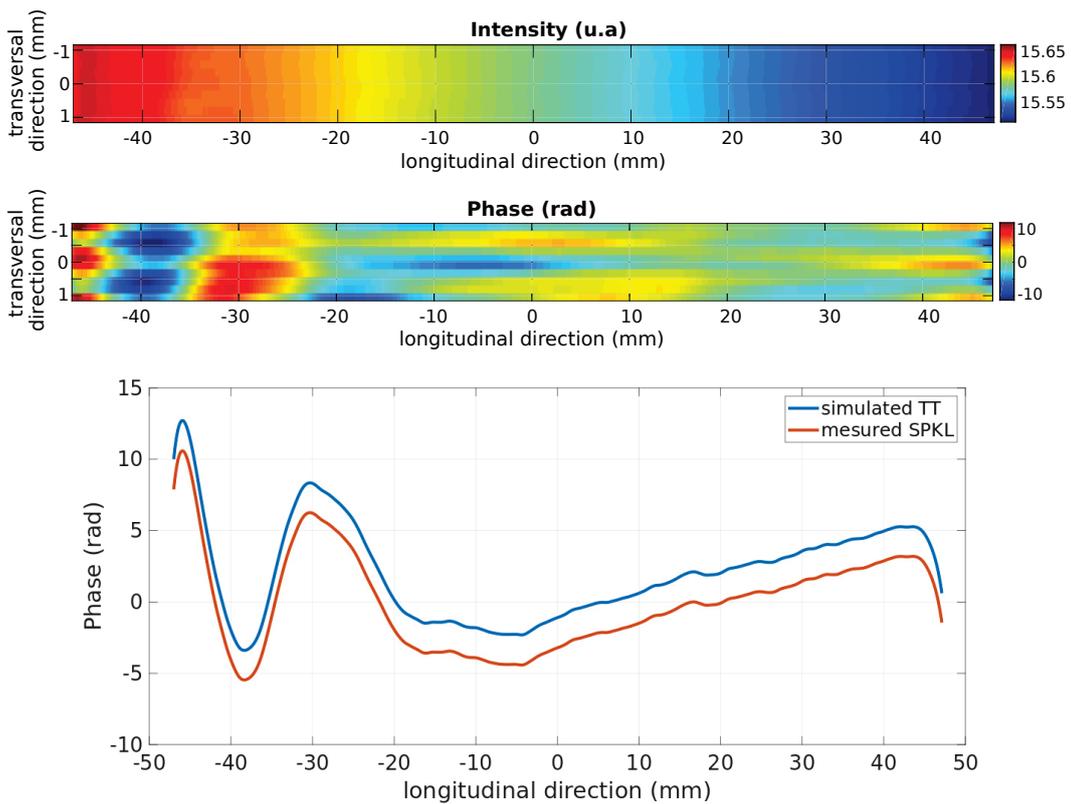


FIGURE 6.14 – Résultat de simulation de Takagi-Taupin obtenu pour la topographie initiale du miroir multicouche 091116. Le profil central de la phase est comparé avec la phase mesurée par la méthode des tavelures en champ proche. L'écart de phase sur la phase simulée provient de la modification de l'épaisseur de bicouche effectuée dans le modèle numérique (voir chapitre 4).

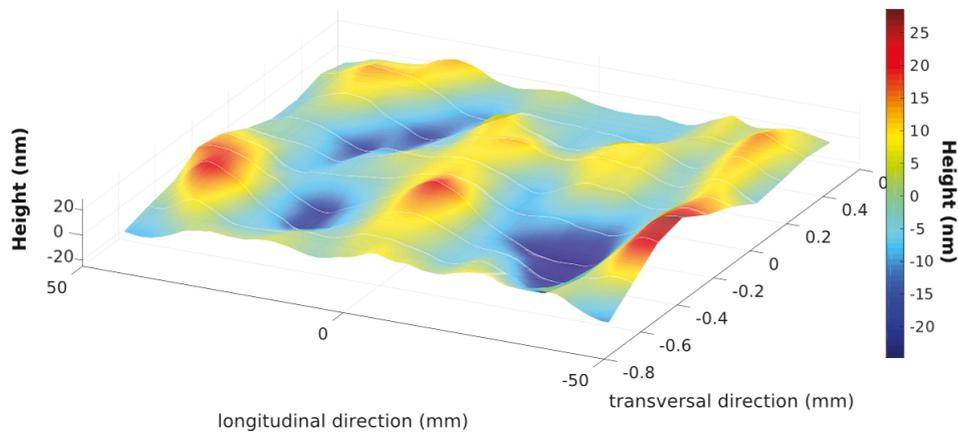


FIGURE 6.15 – Topographie de hauteur reconstruite en utilisant la relation phase-hauteur de la figure (6.11), à partir des valeurs de phase obtenues par mesure des tavelures en champ proche de la multicouche 091124.

ticouche 170906. Les propriétés de la multicouche 170906 sont différentes (l'épaisseur de la bicouche est de  $2.5\text{ nm}$ ) ainsi que les conditions d'illumination (énergie de  $17\text{ keV}$  et angle de réflexion de  $14.8\text{ mrad}$ ).

Les résultats de phase des ondes réfléchies résultants des topographies de défaut de hauteur sont respectivement identiques à ceux mesurés avec la méthode des tavelures en champ proche. La méthode itérative de reconstruction a donc convergé en une itération pour les miroirs 091116 et 170906.

### 6.4.3 Conclusion des résultats

Les résultats de reconstruction des topographies des défauts de hauteur montrent que la méthode itérative proposée a fonctionné. Elle permet de retrouver par la simulation la cartographie de phase obtenue par la mesure des tavelures en champ proche en une seule itération du fait de la relation linéaire entre la phase de l'onde réfléchie et la hauteur de défaut. Cette linéarité est non seulement vraie pour tous les décalages en hauteur de la structure multicouche d'une multicouche parfaite plate comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe 6.4.1, mais aussi lorsque des gradients de hauteur non nuls sont présents, comme dans les topographies des figures (6.13), (6.15) et (6.17). Cela démontre que notre modèle numérique des équations de Takagi-Taupin est, du point de vue de la phase de l'onde réfléchie, équivalent à une surface réfléchissante. De plus, le modèle prend

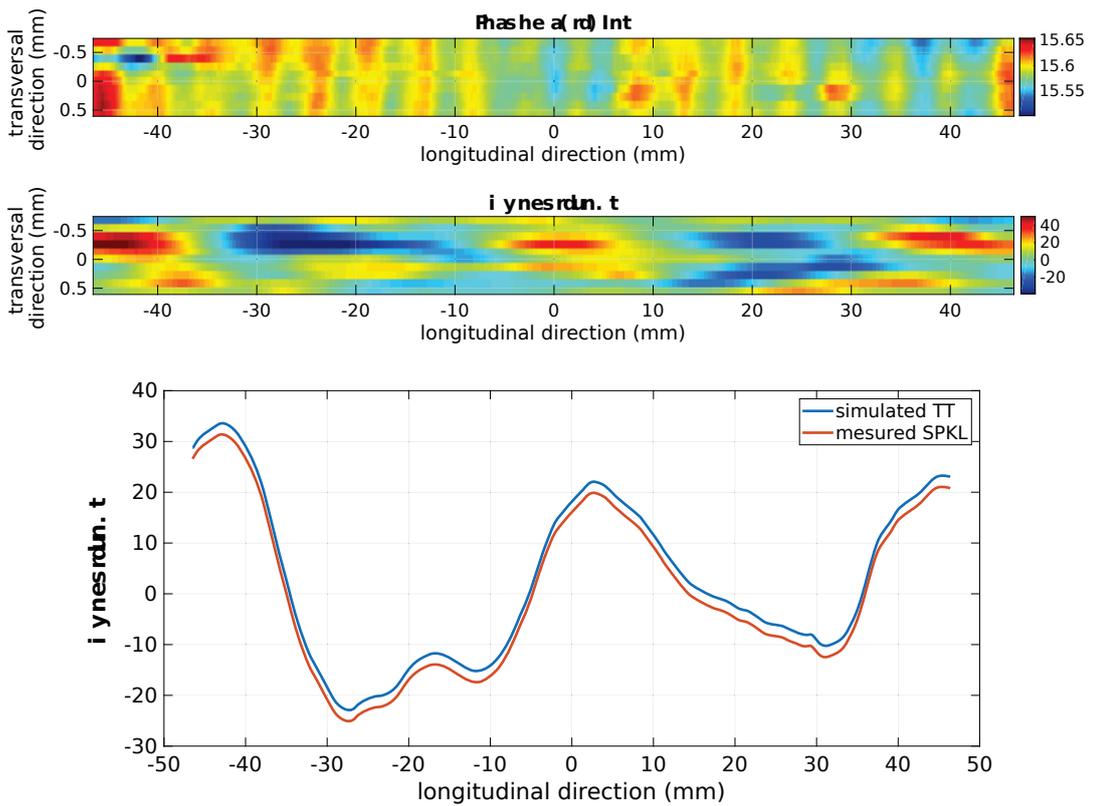


FIGURE 6.16 – Résultat de simulation de Takagi-Taupin obtenu pour la topographie initiale du miroir multicouche 091124. Le profil central de la phase est comparé avec la phase mesurée par la méthode des tavelures en champ proche. L'écart de phase sur la phase simulée provient de la modification de l'épaisseur de la bicouche, effectuée dans le modèle numérique (voir chapitre 4).

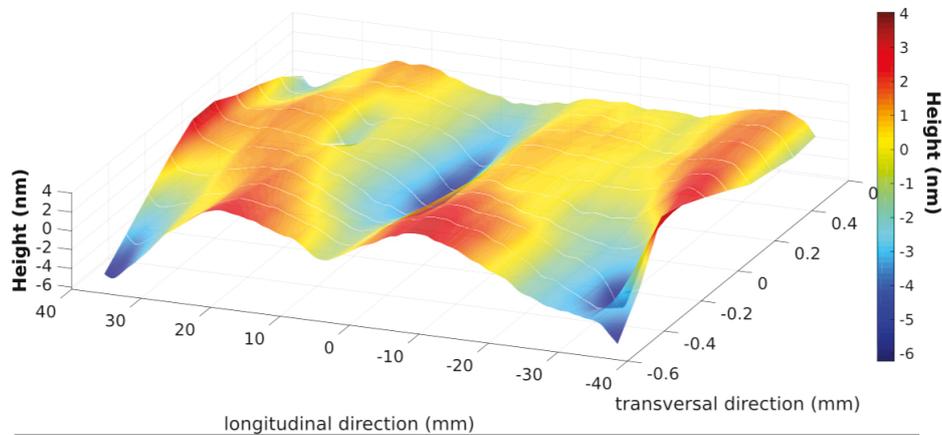


FIGURE 6.17 – Topographie de hauteur reconstruite en utilisant la relation phase-hauteur de la figure (6.11), à partir des valeurs de phase obtenues par mesure des tavelures en champ proche de la multicouche 170906.

en considération le coefficient de réflexion angulaire de la multicouche en modulant l'onde réfléchi en fonction des gradients de hauteur.

Les topographies reconstruites montrent les propriétés des défauts de hauteur responsables des perturbations de phase dans le faisceau réfléchi. L'amplitude des défauts de hauteur est telle que la contribution principale à ces défauts est probablement le substrat sur lequel est déposée la multicouche. En effet, l'amplitude des défauts de période mesurés avec la méthode  $\theta/2\theta$  Imaging est au maximum de l'ordre de 1% de la période. Cette quantité multipliée par le nombre de bicouches produit dans le cas le plus favorable, un écart de hauteur maximal induit par la déposition de l'ordre de 2.4 nm pour la multicouche 091116 (épaisseur de la bicouche 4 nm et 60 bicouches).

## 6.5 Propagation des ondes réfléchies

### 6.5.1 Résultats des miroirs 091116, 091124 et 170906

Les ondes réfléchies par les multicouches dont les topographies de défaut de hauteur ont été reconstruites par la méthode itérative précédente sont maintenant propagées. Les défauts de hauteur reconstruits à partir des données expérimentales contiennent les effets induits par les largeurs de cohérence spatiale du faisceau et par la fonction d'étalement du point

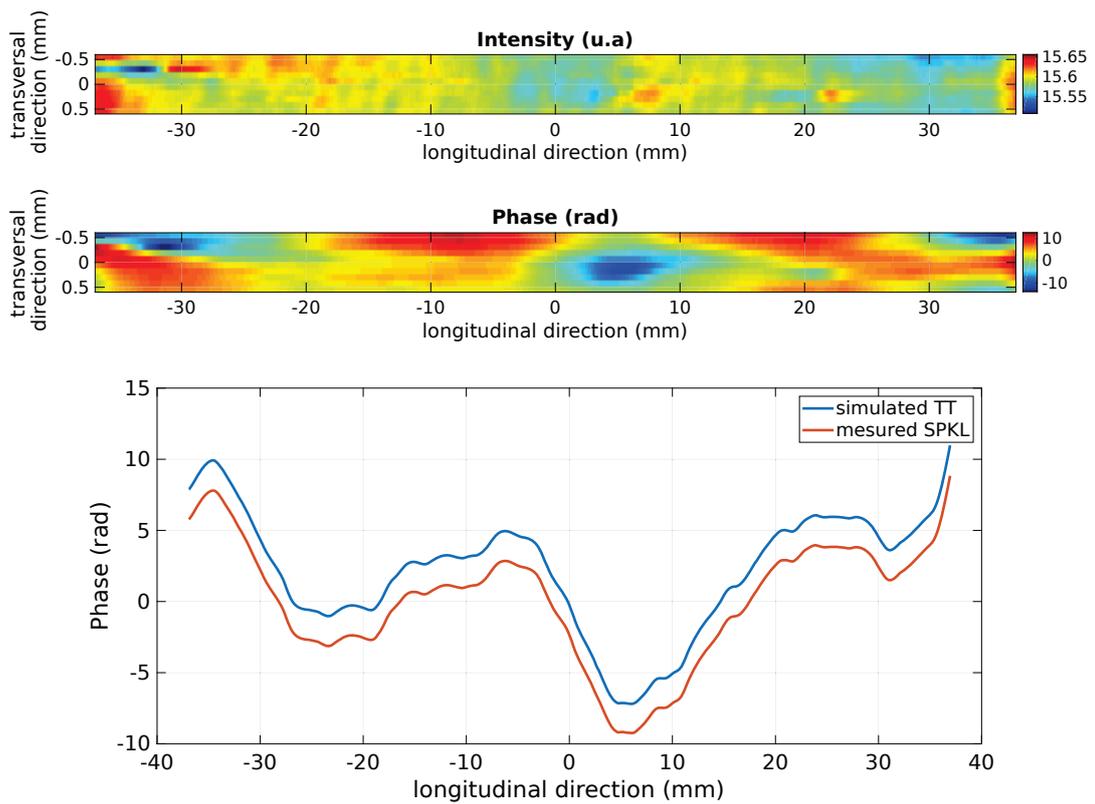


FIGURE 6.18 – Résultat de simulation de Takagi-Taupin obtenu pour la topographie initiale du miroir multicouche 170906. Le profil central de la phase est comparé avec la phase mesurée par la méthode des tavelures en champ proche. L'écart de phase sur la phase simulée provient de la modification de l'épaisseur de la bicouche effectuée dans le modèle numérique (voir chapitre 4).

du détecteur. La propagation des ondes réfléchies ne doit donc pas ajouter ces considérations.

Les résultats de propagation des ondes réfléchies sont des motifs d'intensité dans les faisceaux réfléchis des figures (6.19),(6.20) et (6.21) pour les multicouches 091116, 091124 et 170906.

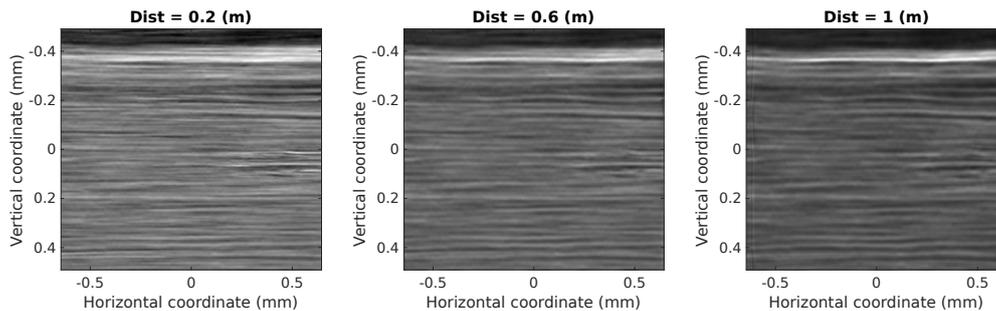


FIGURE 6.19 – Intensité simulée du faisceau réfléchi par la multicouche 091116 avec la topographie de défaut de hauteur figure (6.14) selon la distance de propagation. La comparaison entre le faisceau réfléchi à 0.2 m et 1 m montre de légères variations des motifs d'intensité. En effet ces motifs sont plus nets à la première distance.

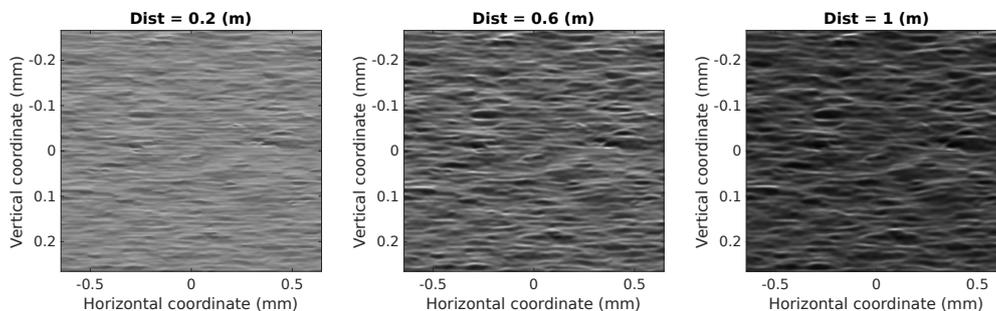


FIGURE 6.20 – Intensité simulée du faisceau réfléchi par la multicouche 091124 avec la topographie de défaut de hauteur figure (6.16) selon la distance de propagation. L'augmentation du contraste des motifs d'intensité avec la distance de propagation est ici visible.

On observe que les perturbations de phase induites par les défauts de hauteur reconstruits pour les différentes multicouches produisent des contrastes d'intensité dans les faisceaux réfléchis. Pour les trois multicouches, le contraste augmente faiblement avec la distance de propagation. La variation du contraste est plus importante sur la multicouche 091124 (figure (6.20)). La distance de propagation modifie faiblement les motifs

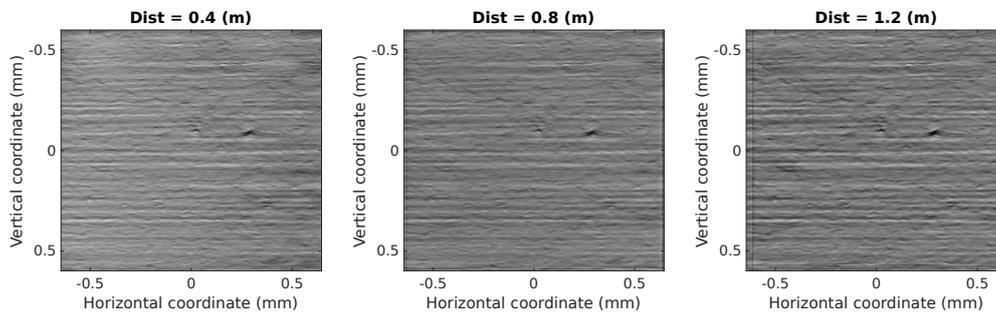


FIGURE 6.21 – Intensité simulée du faisceau réfléchi par la multicouche 170906 avec la topographie de défaut de hauteur figure (6.18) selon la distance de propagation. Dans ce cas, l’augmentation de la distance de propagation produit des motifs plus marqués c’est-à-dire, qu’elle augmente légèrement le contraste, mais semble aussi modifier les motifs d’intensité.

d’intensité. En effet, les figures (6.19) et (6.21) montrent des motifs d’intensité légèrement différents, plus flous avec une distance de propagation plus grande. Ces variations de contraste et de motif sont faibles car les différences de distance de propagation sont également faibles.

Les résultats pour les multicouches 091116 et 170906 montrent des motifs d’intensité en forme de ligne d’intensité qui ressemblent fortement aux mesures expérimentales des faisceaux réfléchis par ces multicouches dans les mêmes conditions (figures (6.22) et (6.24)). Ce constat est moins évident pour la multicouche 091124 où les motifs simulés ont moins la forme de lignes. En comparaison avec les mesures du faisceau réfléchi par le miroir multicouche 091124 (figure (6.23)), les résultats de simulation pour cette multicouche sont plus différents.

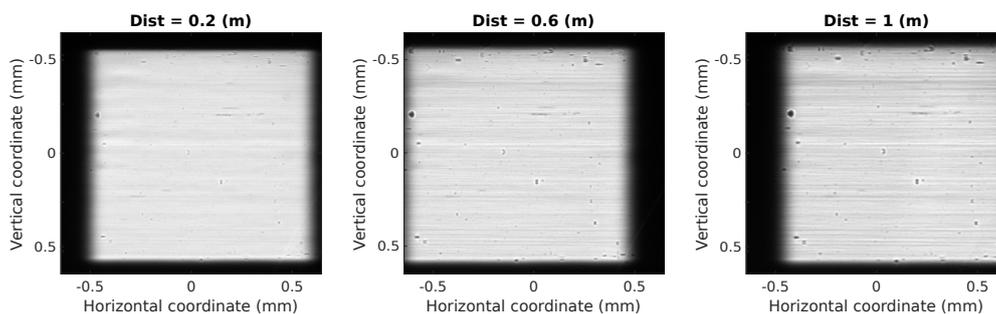


FIGURE 6.22 – Intensité mesurée du faisceau réfléchi par la multicouche 091116 dans les conditions identiques aux cas simulés figure (6.19). La zone illuminée de la multicouche ne correspond pas exactement à la zone mesurée de la multicouche par la méthode des tavelures.

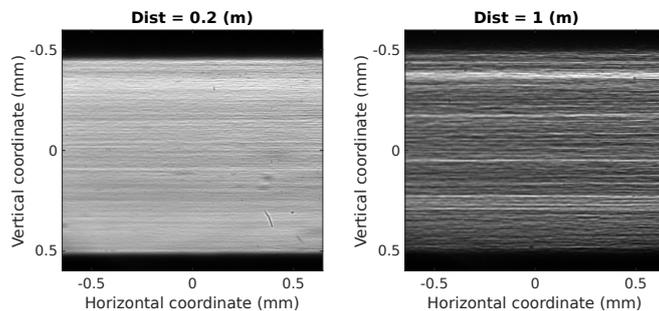


FIGURE 6.23 – Intensité mesurée du faisceau réfléchi par la multicouche 091124 dans les conditions identiques aux cas simulés figure (6.20). La zone illuminée de la multicouche ne correspond pas exactement à la zone mesurée de la multicouche par la méthode des tavelures.

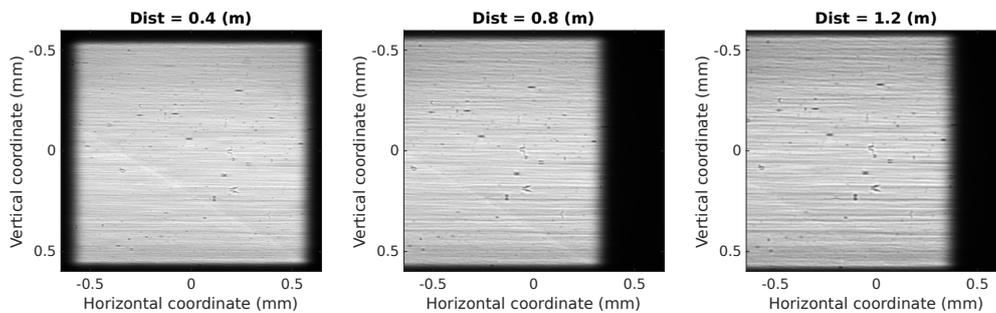


FIGURE 6.24 – Intensité mesurée du faisceau réfléchi par la multicouche 170906 dans les conditions identiques aux cas simulés figure (6.21). La zone illuminée de la multicouche ne correspond pas exactement à la zone mesurée de la multicouche par la méthode des tavelures.

Les variations de contraste avec la distance de propagation augmentent avec les écarts de phase dans l'onde réfléchie. Cela s'observe avec les résultats de la multicouche 091124 (figure (6.20)) où les écarts de phase sont les plus importants. Pour les multicouches 091116 et 170906, les différences entre motifs d'intensité simulés et mesurés proviennent des différences de zone illuminée lors des mesures des tavelures en champ proche et les mesures de faisceau réfléchi. Cependant, la forme géométrique des lignes d'intensité est retrouvée et les propriétés des motifs d'intensité sont proches.

Ce constat est différent pour la multicouche 091124. Les importants écarts de phase dans l'onde réfléchie peuvent en être la cause. Cependant, si la forme des motifs d'intensité simulés ne correspond pas aux lignes observées expérimentalement, il faut tenir compte de la différence d'échelle de

mesure dans la direction verticale de la figure (6.20). En effet, les résultats de simulation donnent un agrandissement, dans cette direction, différent de celui de la figure (6.23). Mis à la même échelle il est possible que la forme des motifs d'intensité se rapprochent.

Une cause complémentaire, pourrait venir des effets induits par les largeurs de cohérence spatiale. En effet, lors de la mesure des tavelures en champ proche, la contribution des largeurs de cohérence spatiale, fixée par la distance échantillon/détecteur, est constante. Les simulations de propagation considèrent ces effets de cohérence spatiale identiques, pour toutes les distances de propagation. Cela peut produire des résultats différents lorsque la distance de propagation simulée est très différente de la distance échantillon/détecteur utilisée pour la mesure des tavelures.

## 6.5.2 Conclusion des résultats

Les résultats de simulation des propagations des ondes réfléchies par les multicouches avec leurs défauts de hauteur reconstruits par la méthode énoncée dans la partie §6.4, montrent des résultats proches des mesures de faisceau réfléchi. Cela montre que les outils développés permettent de retrouver et de simuler des défauts de hauteur dans la structure multicouche, mais aussi de prévoir les motifs d'intensité dans le faisceau réfléchi. Des tests de caractérisation des défauts de hauteur peuvent être simulés afin de définir des contraintes de fabrication de miroir multicouche, en vue d'éviter la présence de contraste d'intensité dans le faisceau réfléchi.

## 6.6 Conclusion du modèle

Nous avons modifié un modèle numérique basé sur les équations de Takagi-Taupin pour prendre en considération des défauts de hauteur de la structure multicouche. Les premiers tests ont permis de valider les résultats de simulation de cas simples. Des vérifications ont été effectuées pour établir les biais et les contraintes numériques liés au bon fonctionnement des simulations.

Les tests de propagation de l'onde réfléchie par une multicouche ont permis de mettre en évidence les difficultés de reconstruction des défauts de hauteur à l'origine des lignes d'intensité, en étudiant les intensités mesurées dans un détecteur. La mesure de front d'onde par les tavelures en champ proche et la méthode itérative ont permis de simplifier et de limiter le problème de la reconstruction des défauts de hauteur par l'utilisation de

la phase.

Les simulations du modèle numérique de Takagi-Taupin montrent que les défauts de hauteur de la structure multicouche sont analogues aux défauts de hauteur d'une surface réfléchissante. En considérant nos hypothèses de travail dans le modèle numérique, il est désormais simple de reconstruire les défauts de hauteur d'un miroir multicouche. Ainsi, si l'on considère que ce sont principalement les défauts de hauteur de la structure multicouche qui produisent les distorsions de phase dans l'onde réfléchie par la multicouche, alors les défauts de hauteur de la structure multicouche peuvent être calculés simplement à partir d'une surface réfléchissante. L'intensité réfléchie peut alors être modulée par un coefficient de réflexion angulaire en fonction de la pente locale.

De plus, les modèles de propagation de Fresnel et de largeur de cohérence partielle de faisceau permettent de simuler des situations réelles d'utilisation des miroirs multicouches, utiles pour un travail d'optimisation des miroirs multicouches.



# **Chapitre 7**

## **Conclusion**

## 7.1 Conclusions générales

Ce projet de thèse est centré sur l'élaboration d'un modèle numérique et sur des simulations de défaut dans les multicouches en vue de l'étude des lignes d'intensité observées dans le faisceau réfléchi de ces miroirs. L'implémentation de défaut dans notre modèle numérique des équations de Takagi-Taupin nous a conduit à vérifier nos hypothèses sur la nature des défauts dans une multicouche.

Pour cela, des campagnes de mesure et d'analyse de données de faisceau de rayons X réfléchis, de cohérence spatiale, d'holographie, de tavelures en champ proche, de "Rocking Cuve Imaging", et de  $\theta/2\theta$  Imaging, ont été réalisées. Ces deux dernières ont été appliquées pour la première fois aux multicouches. Un modèle numérique des équations de Takagi-Taupin a été modifié pour considérer des défauts de hauteur de la structure multicouche des miroirs multicouches. Des modèles complémentaires de propagation de Fresnel et d'intensité mutuelle ont été produits pour permettre les comparaisons des résultats de simulation avec les résultats expérimentaux. Des simulations ont alors été faites pour tester le modèle, avant d'effectuer les simulations et de déterminer les défauts à l'origine des lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi. La multitude d'informations de nature expérimentale et numérique, et pour certaines totalement nouvelles, permettent d'apporter de nouvelles connaissances sur les origines des lignes d'intensité.

A partir de ces résultats, une série d'observations sont discutées dans le paragraphe suivant.

### 7.1.1 Discussions

Les premières informations que l'on peut interpréter avec les résultats expérimentaux sont celles concernant la forme des défauts qui produisent les lignes d'intensité. La forme étirée des variations d'intensité suppose que les défauts soient eux aussi étirés et qu'ils forment un ensemble de "crêtes et vallées" dans le cas de défaut de hauteur. Or, ces "crêtes et vallées" n'étaient pas observées avec les mesures d'interférométrie Fizeau. L'explication de la forme étirée des lignes d'intensité a deux origines.

La première, la plus importante, est l'effet de projection à angle rasant discuté dans le chapitre 3 (§3.3.3); la seconde accentue la formation des lignes d'intensité en diminuant le contraste de manière anisotropique, du fait des largeurs de cohérence spatiale de la source, différentes dans les directions horizontale et verticale (voir chapitre 5, §5.4).

Le lien entre la cohérence du faisceau et le contraste des motifs d'intensité réfléchis par une multicouche est connu. Ce sont ces deux contributions qui donnent la forme des lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi. Les effets des défauts à l'origine des motifs d'intensité sont donc une perturbation de la phase dans le faisceau réfléchi. Nous avons identifié deux types de défaut potentiellement responsables de la perturbation de phase. Le défaut de hauteur traduit un déplacement vertical de la structure multicouche tout en conservant l'épaisseur des bicouches. Les défauts de hauteur sont provoqués par un défaut à la surface du substrat qui se transmet localement à toute la structure multicouche (au-dessus de ce défaut), mais aussi par des défauts de période (des écarts de période de  $1/100^{\text{ème}}$  de la période, multiplié par 10 bicouches produisent déjà un défaut de hauteur de  $1/10^{\text{ème}}$  de période). Le défaut de période est une variation de la période locale (épaisseur de bicouche moyenne) qui serait induite par une déposition des matériaux pas parfaitement homogène lors de la fabrication de la multicouche. Il existe aussi des phénomènes d'inter diffusion et de rugosité aux interfaces des couches mais nous considérerons ici qu'ils ne modifient pas l'épaisseur de la bicouche. Même si l'inter diffusion et la rugosité sont des paramètres importants dans une multicouche, ils ne semblent pas contribuer à perturber la phase de l'onde réfléchie et n'ont donc pas été considérés.

Le problème des lignes d'intensité est donc de retrouver les contributions indépendantes des défauts de hauteur et des défauts de période par rapport aux effets de phase. Habituellement, les multicouches sont caractérisées (à l'ESRF) par interférométrie visible type Fizeau. Cependant, cette méthode présente deux inconvénients. Le premier est de caractériser seulement la surface de la multicouche. C'est pourquoi, elle ne permet pas de répondre sur l'origine des variations de hauteur, à savoir la transmission des défauts de surface du substrat et/ou les variations de période. Le second est que la mesure est effectuée avec de la lumière visible, tandis que les multicouches sont exploitées avec des rayons X dans des configurations expérimentales très différentes (incidence normale pour le visible et incidence rasante pour les rayons X). Cela signifie que les sensibilités de mesure de hauteur et les résolutions spatiales peuvent ne pas être pertinentes pour le problème des lignes d'intensité avec les rayons X.

Pour répondre aux inconvénients des mesures d'interférométrie, les méthodes d'imagerie (rayons X) par diffraction de Bragg ont été expérimentées pour la première fois sur des miroirs multicouches. Respectivement, les mesures de Rocking Curve Imaging et  $\theta/2\theta$  Imaging pourraient

fournir indépendamment et avec une grande sensibilité, les défauts de pente et les défauts de période. Ces techniques expérimentales permettraient donc de distinguer les différences de contribution aux effets de phase entre les défauts de hauteur et de période. Nous avons mentionné les spécificités des multicouches et en particulier la largeur à mi-hauteur des courbes de réflectivité, qui limitent fortement la résolution spatiale des mesures de Rocking Curve Imaging pour les multicouches. Pour cela, une solution expérimentale aux mesures de RCI est proposée en annexe D. Les traitements de données ainsi que les analyses ont été adaptés et sont détaillés en annexe C. En définitive, les mesures par imagerie de diffraction de Bragg ont été adaptées et ont permis de conclure que les multicouches possèdent aussi des défauts de hauteur et des défauts de période. A terme, ce travail pourrait fournir aux futurs utilisateurs de miroir multicouche, de nouvelles méthodes de caractérisation rayons X des miroirs multicouches à trois dimensions et en particulier les défauts de pente et les défauts de période de la structure multicouche.

Les mesures des tavelures en champ proche sont des mesures de la phase de l'onde réfléchi par les miroirs multicouches. La phase mesurée est produite par les contributions mêlées des défauts de hauteur et de période. Cette technique permet dans le cas de surface réfléchissante, d'obtenir la topographie de hauteur de la surface, comme pour le substrat de silice super polie de la multicouche 170906. Mais cela n'est pas possible pour les multicouches. L'observation des résultats de mesure des tavelures en champ proche permet de comparer les effets de phase produits par les différentes multicouches étudiées.

Ainsi, nous avons observé que la multicouche 091116, avec un substrat de meilleure qualité que la multicouche 091124, produit des effets de phase moins importants, pour les mêmes caractéristiques de dépôt. Cela apporte une confirmation supplémentaire de l'influence importante du substrat sur les lignes d'intensité produites par la multicouche. De plus, en comparant la phase de l'onde réfléchi par le substrat nu avec celle de la multicouche 170906 déposée sur ce substrat, nous voyons que la phase de l'onde réfléchi est différente. Cela traduit une contribution du volume de diffraction de la multicouche qui s'ajoute aux effets de phase produits par des défauts de hauteur.

Les mesures de phase avec les tavelures en champ proche ont aussi été utilisés pour les simulations.

En résumé, les résultats des mesures des tavelures en champ proche, montrent la prédominance de la qualité du substrat sur les défauts de hauteur, mais aussi l'importance de considérer les effets du volume de diffraction des miroirs multicouches.

Les campagnes de mesure ont conduit à adapter et à proposer de nouvelles méthodes de caractérisation des miroirs multicouches. Ces dernières ont fourni des résultats qui sont utiles à la compréhension des défauts dans les multicouches. De plus, certains résultats ont été exploités dans des simulations, pour ce travail de thèse. Cependant, ces nouvelles méthodes de caractérisation rayons X des miroirs multicouches, seront aussi utiles pour les fabricants de miroir multicouche.

Les travaux de modélisation ont été effectués avec la modification d'un modèle existant de miroir multicouche elliptique pour intégrer les défauts de hauteur de la structure multicouche. Des tests et des simulations ont montré la complexité de la reconstruction par simulation des défauts, en étudiant les lignes d'intensité produites. Ainsi, c'est la phase de l'onde réfléchie qui doit être utilisée pour la reconstruction des défauts d'une multicouche. Les mesures de front d'onde comme les méthodes de tavelures en champ proche ou d'holographie permettent de reconstruire les défauts de hauteur avec notre modèle numérique des équations de Takagi-Taupin. Cependant, cette reconstruction ne tient compte que des défauts de hauteur de la structure multicouche et les résultats de simulation montrent que le modèle produit des résultats équivalents à ceux d'une surface réfléchissante.

Cette observation est cohérente avec les considérations des défauts de hauteur seuls dans le modèle numérique. Pour être complet, le modèle doit prendre en compte les défauts de période qui représentent le volume de diffraction de la multicouche. Cependant, nous montrons ainsi que la considération des défauts de hauteur de la structure multicouche du point de vue de la phase est analogue à ceux d'une surface réfléchissante. La contribution du substrat et donc indirectement celle des défauts de hauteur est démontrée expérimentalement, comme étant la plus importante.

Des reconstructions de défaut ont été produits par méthode itérative avec les résultats de mesure des tavelures en champ proche et avec notre modèle. Nous avons ainsi réussi à reconstruire les défauts de hauteur (équivalents) qui produisent les distorsions de phase de l'onde réfléchie et donc des lignes d'intensité. Cette méthode itérative a aussi permis de montrer l'équivalence des effets des défauts de hauteur d'une surface réfléchissante pour les cas réels des multicouches étudiés. Ainsi, il est possible de reconstruire simplement à partir d'une relation analytique simple les défauts de hauteur équivalents d'une multicouche dont les perturbations de phase (et donc des lignes d'intensité) sont mesurées avec la méthode des tavelures

en champ proche ou par holographie.

En conclusion, l'étude des lignes d'intensité du faisceau réfléchi par une multicouche peut s'effectuer de manière approximée grâce à une multicouche contenant des défauts de hauteur dans sa structure multicouche. Cette approximation est très simple à évaluer car elle est analogue à une surface réfléchissante avec des défauts de hauteur. En revanche l'étude complète des défauts de la multicouche exige de simuler la propagation des ondes incidentes et diffractées dans le volume de la multicouche, afin de considérer les défauts de période. Ces défauts sont difficiles à introduire dans notre modèle, principalement en raison de l'usage initial du modèle que nous avons modifié. Cependant, un modèle utilisant la solution analytique de l'onde complexe (amplitude et phase de l'onde) d'une multicouche parfaite (annexe A) peut permettre une implémentation à la fois des défauts de hauteur et des défauts de période. De plus, le calcul de la propagation dans le volume de la multicouche peut être fait indépendamment pour chaque voxel, si on considère que chaque voxel n'influence pas les voxels voisins. Cela est vérifié si le voxel est équivalent au volume de diffraction d'un photon X. L'intérêt supplémentaire d'un tel modèle sera de s'affranchir de calcul numérique dans un volume et de limiter considérablement le nombre de calculs à effectuer.

### 7.1.2 Perspectives

Ce travail de doctorat a établi les bases de l'étude des motifs d'intensité produits dans le faisceau réfléchi des miroirs multicouches, selon les aspects expérimentaux, de modélisation numérique et de simulation. Chacun de ces aspects peut être approfondi ou amélioré pour tenter de définir les critères de fabrication de miroir multicouche où les lignes d'intensité dans le faisceau réfléchi sont minimisées.

Les mesures de défaut dans les multicouches peuvent être effectuées avec les méthodes d'imagerie en diffraction de Bragg et de mesure de front d'onde. La mesure de Rocking Curve Imaging peut être améliorée en ajoutant un dispositif réduisant la largeur de la "Rocking Curve", mesurée de la multicouche. Ce dispositif est détaillé en annexe D, et consiste en l'utilisation d'un cristal. Ce cristal agira alors comme un filtre angulaire du faisceau diffracté.

La modélisation des défauts de la multicouche pourrait être complétée

avec un nouveau modèle qui reprend la solution analytique de la réflectivité complexe d'une multicouche avec les équations de Takagi-Taupin. Ce modèle permettra de simuler à la fois les défauts de hauteur et les défauts de période. Ainsi, les simulations permettront de comparer les effets de phase produits purement par une différence de période, avec les effets de phase produits par des défauts de hauteur. Des reconstructions des défauts de hauteur et de période combinés seront alors à tester et à comparer avec les mesures de front d'onde, par les méthodes des tavelures en champ proche ou par holographie.

Enfin, des simulations de propagation d'onde avec la phase perturbée permettraient d'explorer les possibilités de l'effet Talbot. Si l'on sait que seule une multicouche parfaite ne produit pas de motif d'intensité dans son faisceau réfléchi, l'effet de Talbot lui peut permettre de rechercher des conditions de phase (amplitude et gamme fréquentielle) où les motifs d'intensité sont suffisamment petits pour ne pas être observés par le détecteur.



## **Annexe A**

### **Modélisation de multicouche avec la solution analytique des équations de Takagi-Taupin**

## A.1 Principe de modélisation

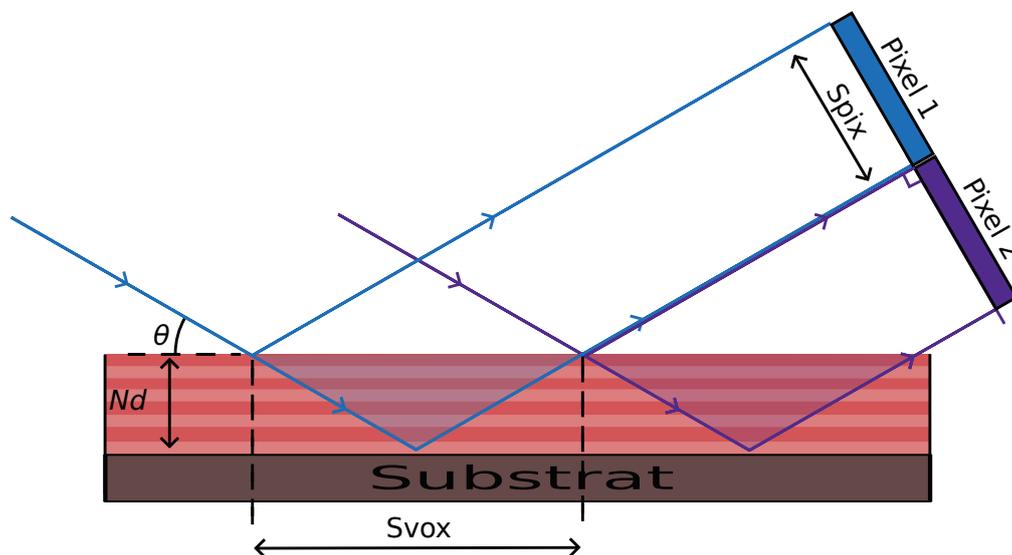


FIGURE A.1 – Représentation de deux voxels indépendants. La direction d'incidence et la diffraction de Bragg, fixent une seule direction de propagation des photons. Il est donc possible de définir, à partir des pixels du détecteur dont la taille est  $S_{pix}$ , le volume de diffraction (maximal) nécessaire pour réfléchir les photons X détectés dans un pixel (schématisé par les zones en surbrillance). La taille à la surface de la multicouche du voxel est :  $S_{vox} = \frac{S_{pix}}{\sin \theta}$ .

La figure (A.1) montre que la direction des photons X réfléchis permet de définir les volumes de diffraction qui contribuent à la réflexion des photons X. En considérant des voxels correspondants aux volumes de diffraction des photons X, les voxels peuvent être considérés indépendants. Une multicouche peut être alors décomposée en voxels indépendants, chaque voxel se comportant alors comme une petite multicouche. Pour reproduire les défauts de période et de pente (ou de hauteur) d'une multicouche, des variations entre chaque voxel de la période et de pente de la structure multicouche doivent être considérées. C'est à dire que chaque voxel est équivalent à une multicouche parfaite avec une période et une erreur de pente. Le calcul de l'onde complexe (amplitude et phase) réfléchi par le voxel peut être fait à partir de la solution analytique des équations de Takagi-Taupin. Ce calcul doit être effectué pour tous les voxels qui composent la multicouche.

## A.2 solution analytique des équations de Takagi-Taupin

Rappelons le système d'équations différentielles de Takagi-Taupin 4.4

$$\begin{cases} (\alpha_0 \partial_x + \beta_0 \partial_z) E_0 = i \left( u_0 E_0 + u_{\bar{1}} E_h e^{i\vec{h} \cdot \vec{u}} \right) \\ (\alpha_h \partial_x - \beta_h \partial_z) E_h = i \left( (u_0 + \sigma) E_h + u_1 E_0 e^{-i\vec{h} \cdot \vec{u}} \right) \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

Avec  $u_i = k\chi_i/2$ ,  $\sigma = \frac{\xi}{2k}$  ainsi que  $\alpha_{0,h} = \vec{k}_{0,h} \cdot \vec{u}_x$  et  $\beta_{0,h} = \vec{k}_{0,h} \cdot \vec{u}_z$ .

La solution au cas d'une multicouche parfaite et plate, le problème est homogène dans la direction  $\vec{u}_x$ , alors  $\partial_x E_{0,h} = 0$ ,  $\vec{u} = \vec{0}$ ; pour alléger l'écriture considérons  $\beta_{0,h} = \beta = \sin(\theta_B)$ , et le système devient :

$$\begin{cases} \beta \partial_z E_0 = i \left( u_0 E_0 + u_{\bar{1}} E_h \right) \\ -\beta \partial_z E_h = i \left( (u_0 + \sigma) E_h + u_1 E_0 \right) \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

Étudions la solution aux équations différentielles de la forme  $E_0 = e^{i\omega s}$  et  $E_h = \rho e^{i\omega s}$ . Où  $s = z/\beta$ . En remplaçant dans (A.2), les équations deviennent :

$$\begin{cases} \omega = u_0 + \rho u_{\bar{1}} \\ -\rho \omega = (u_0 + \sigma) \rho + u_1 \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

qui une fois associées entre elles donne :

$$\omega^2 + \omega \left( (u_0 + \sigma) - u_0 \right) = u_0 (u_0 + \sigma) - u_1 u_{\bar{1}} \quad (\text{A.4})$$

Les solutions sont :

$$\omega_{1,2} = \frac{-\sigma \pm \sqrt{\sigma^2 + 4 \left( \sigma u_0 + u_0^2 - u_1 u_{\bar{1}} \right)}}{2}$$

Les coefficients  $\rho_{1,2}$  sont calculés avec  $\rho_{1,2} = \frac{\omega_{1,2} - u_0}{u_{\bar{1}}}$ . Les solutions aux équations de Takagi Taupin ont donc les formes suivantes :

$$\begin{cases} E_0 = C_1 e^{i\omega_1 s} + C_2 e^{i\omega_2 s} \\ E_h = C_1 \rho_1 e^{i\omega_1 s} + C_2 \rho_2 e^{i\omega_2 s} \end{cases} \quad (\text{A.5})$$

Les conditions aux limites de la multicouche permettent de déterminer les constantes  $C_1, C_2$ .  $E_0(z = s = 0) = 1$ ;  $E_h(z = s = 0) = R$  où  $R$  est la réflectivité;  $E_h(z = t \rightarrow s = T) = 0$  avec  $t$  l'épaisseur de la multicouche et  $T = t/\beta$ . Ainsi,

$$E_0(s = 0) = 1 = C_1 + C_2 \quad (\text{A.6})$$

$$R = C_1\rho_1 + C_2\rho_2 \quad (\text{A.7})$$

$$E_h(s = T) = C_1\rho_1 e^{i\omega_1 T} + C_2\rho_2 e^{i\omega_2 T} = 0 \quad (\text{A.8})$$

En utilisant (A.6) l'équation (A.8) permet d'obtenir :

$$C_2 = \frac{-\rho_1 e^{i\omega_1 T}}{\rho_2 e^{i\omega_2 T} - \rho_1 e^{i\omega_1 T}} ; C_1 = \frac{\rho_2 e^{i\omega_2 T}}{\rho_2 e^{i\omega_2 T} - \rho_1 e^{i\omega_1 T}} \quad (\text{A.9})$$

Alors la réflectivité complexe s'obtient en introduisant (A.9) dans (A.10).

$$R = \rho_1\rho_2 \frac{e^{iT(\omega_2 - \omega_1)} - 1}{\rho_2 e^{iT(\omega_2 - \omega_1)} - \rho_1} \quad (\text{A.10})$$

### Exemple de script de la solution analytique

Le script suivant permet d'effectuer ce calcul avec le logiciel Mathematica.

$$\text{In[26]:= } n1 = 1 - 1.95 * 10^{-5} + I 3.31 * 10^{-6};$$

$$\text{In[27]:= } n2 = 1 - 3.23 * 10^{-6} + I 1.19 * 10^{-9};$$

$$\text{In[28]:= } X1 = n1^2 - 1;$$

$$\text{In[29]:= } X2 = n2^2 - 1;$$

$$\text{In[30]:= } cx1b = \left( \text{Integrate}[X1 * \text{Exp}[-I * 2 * \text{Pi} * 1 * z / 4], \{z, -2, 0\}] + \text{Integrate}[X2 * \text{Exp}[-I * 2 * \text{Pi} * 1 * z / 4], \{z, 0, 2\}] \right) / 4$$

$$\text{Out[30]:= } -2.10641 \times 10^{-6} - 0.0000103577 i$$

$$\text{In[31]:= } cx1 = \left( \text{Integrate}[X1 * \text{Exp}[-I * 2 * \text{Pi} * (-1) * z / 4], \{z, -2, 0\}] + \text{Integrate}[X2 * \text{Exp}[-I * 2 * \text{Pi} * (-1) * z / 4], \{z, 0, 2\}] \right) / 4$$

$$\text{Out[31]:= } 2.10641 \times 10^{-6} + 0.0000103577 i$$

$$\text{In[32]:= } cx0 = (\text{Integrate}[X1, \{z, -2, 0\}] + \text{Integrate}[X2, \{z, 0, 2\}]) / 4$$

$$\text{Out[32]:= } -0.0000227298 + 3.31113 \times 10^{-6} i$$

$$\text{In[33]:= } wavL = 0.0826;$$

$$\text{In[34]:= } k = 2 * \text{Pi} / wavL;$$

$$\text{In[35]:= } u0 = cx0 * k / 2;$$

$$\text{In[36]:= } u1b = cx1b * k / 2;$$

$$\text{In[37]:= } u1 = cx1 * k / 2;$$

$$\text{In[38]:= } thb = 0.0109;$$

$$\text{In[39]:= } aalfa = 2 * (tth - thb) * \text{Sin}[2 * thb] * k / 2;$$

$$\text{In[40]:= } ddt a = (u0 + aalfa)^2 - 4 * (u1 * u1b - u0 + (u0 + aalfa));$$

$$\text{In[41]:= } w1 = (-aalfa + \text{Sqrt}[aalfa^2 + 4 * (u0^2 + u0 * aalfa - u1 * u1b)]) / 2$$

$$\text{Out[41]:= } \frac{1}{2} \left( \sqrt{4 \left( (5.82731 \times 10^{-7} - 1.5462 \times 10^{-7} i) - (0.00143347 - 0.000208818 i) (-0.0109 + tth) \right) + 2.74944 (-0.0109 + tth)^2} - 1.65814 (-0.0109 + tth) \right)$$

$$\text{In[42]:= } w2 = (-aalfa - \text{Sqrt}[aalfa^2 + 4 * (u0^2 + u0 * aalfa - u1 * u1b)]) / 2$$

$$\text{Out[42]:= } \frac{1}{2} \left( -\sqrt{4 \left( (5.82731 \times 10^{-7} - 1.5462 \times 10^{-7} i) - (0.00143347 - 0.000208818 i) (-0.0109 + tth) \right) + 2.74944 (-0.0109 + tth)^2} - 1.65814 (-0.0109 + tth) \right)$$

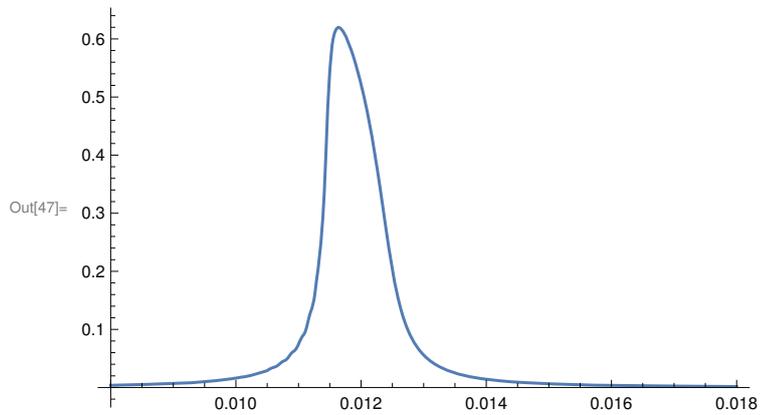
$$\text{In[43]:= } ro1 = (w1 - u0) / u1b;$$

$$\text{In[44]:= } ro2 = (w2 - u0) / u1b;$$

$$\text{In[45]:= } tt = 4 * 60 / \text{Sin}[thb];$$

$$\text{In[46]:= } res = ro1 * ro2 * (\text{Exp}[I * tt * (w2 - w1)] - 1) / (ro2 * \text{Exp}[I * tt * (w2 - w1)] - ro1);$$

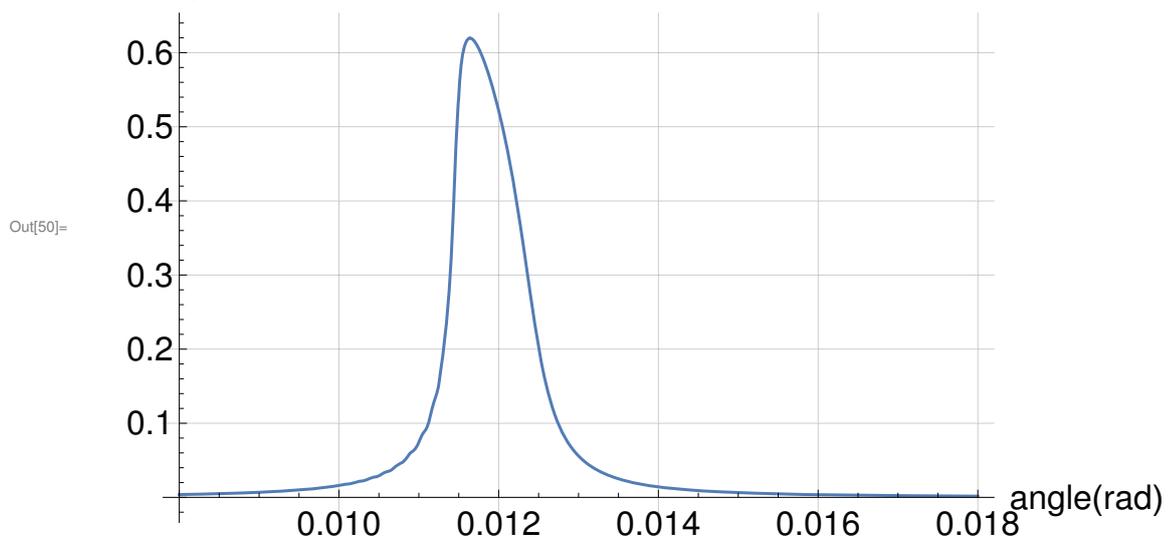
```
In[47]:= rc = Plot[Conjugate[res] * res, {tth, 0.008, 0.018}, PlotRange -> All]
```



```
In[50]:= Show[%48, AxesLabel -> {HoldForm[angle[rad]], HoldForm[Intensity[u.a]]},  
PlotLabel -> HoldForm[Rocking Curve],  
LabelStyle -> {18, GrayLevel[0]}, GridLines -> Automatic]
```

### Rocking Curve

Intensity(*u.a*)



## **Annexe B**

# **Résultats Imagerie par diffraction de Bragg multicouche 091124**

## **B.1 Image du faisceau diffracté**

### **B.1.1 Configuration expérimentale**

La configuration expérimentale utilisée pour les mesures de la multicouche 091124, est la même que pour la multicouche 091116 (voir chapitre 3, §3.4.2). On rappelle ici cette configuration :

L'énergie du faisceau monochromatique de rayons X est de  $15\text{ keV}$ . L'utilisation de la caméra FRELON se fait avec l'optique  $\times 20$ . La surface illuminée de la multicouche est constante (quel que soit l'angle de la multicouche par rapport au faisceau incident). La largeur du faisceau est fixée par le champ de vue de la caméra FRELON ( $1.53 \times 1.53\text{ mm}^2$ ). Le plan de diffraction est vertical (soit la surface du miroir positionnée horizontalement et le faisceau réfléchi est orienté vers le haut).

### **B.1.2 Paramètres de la mesure du miroir 091124**

La multicouche 091124 a été caractérisée sur le diffractomètre 3 axes de la première cabine expérimentale. Ce choix est justifié par le mode d'injection (des électrons dans le synchrotron) plus faible ce jour là. L'angle de réflexion maximal mesuré expérimentalement est  $11.2\text{ mrad}$ . Avec des angles de rotation pour la mesure RCI compris entre  $10.6\text{ mrad}$  et  $11.7\text{ mrad}$  avec 250 angles de mesure, soit une résolution de  $4.68\text{ }\mu\text{rad}$  qui est proche de la résolution angulaire disponible de l'instrument utilisé. Le temps de comptage pour cette mesure est de soixante secondes. Le détecteur (une caméra Frelon avec l'optique d'agrandissement  $\times 20$ ) est placé à  $45\text{ cm}$  du centre de la multicouche. Les images obtenues pour les angles de rotation initial, médian et final sont illustrés figure (B.1).

## **B.2 Résultat imagerie $\theta/2\theta$ : multicouche 091124**

### **Cartographie des périodes locales multicouche 091124**

La reconstruction des écarts de période obtenus pour la multicouche 091124 est donnée figure (B.2). On peut distinguer des défauts de période principalement dans la direction verticale (direction longitudinale à la multicouche). La fréquence spatiale

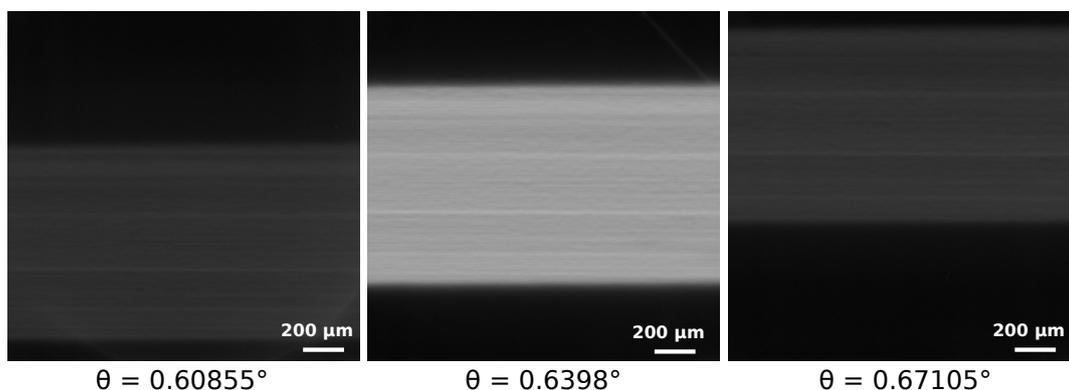


FIGURE B.1 – Signal réfléchi par la multicouche 091124 dans le détecteur pour différents angles de réflexion. L'échelle d'intensité est différente pour les trois images, car l'intensité réfléchie est faible pour les angles de réflexion  $\theta = 0.60855^\circ$  et  $0.67105^\circ$ . On observe le déplacement vertical du signal réfléchi lié à la largeur de la "Rocking Curve" pour une multicouche.

de ces défauts de période dans la direction verticale n'est pas constante. On peut distinguer des zones où ces fréquences spatiales sont (relativement) constantes.

La période (verticale) moyenne des défauts est de  $1.287 \text{ mm}$  et l'écart de période maximal mesuré est de  $4.92 \cdot 10^{-2} \text{ nm}$ .

### B.2.1 Comparaison résultats imagerie $\theta/2\theta$ 091116 et 091124

Le tableau suivant permet de comparer les valeurs caractéristiques des deux miroirs que nous avons mesurés avec la méthode  $\theta/2\theta$  Imaging.

miroir	$\langle FWHM \rangle$ ( $^\circ/mrad$ )	$\langle PPB \rangle$ ( $^\circ/mrad$ )	$\langle \Delta d \rangle$ (nm)	écart type $\Delta d$ (pm)
091116	0.029174 / 0.5092	0.62594 / 10.9247	3.783	1.995
091124	0.041879 / 0.7309	0.63881 / 11.1493	3.707	6.8303

Nous observons que ces deux multicouches ont une période moyenne équivalente. En revanche la largeur à mi-hauteur de la courbe  $\theta/2\theta$  est plus grande pour la multicouche 091124 en raison d'un nombre inférieur de bicouches par rapport à la multicouche 091116. Les résultats montrent que les écarts de période sont aussi plus grands pour la multicouche 091124. Du point de vue des variations de période locale les résultats confirment

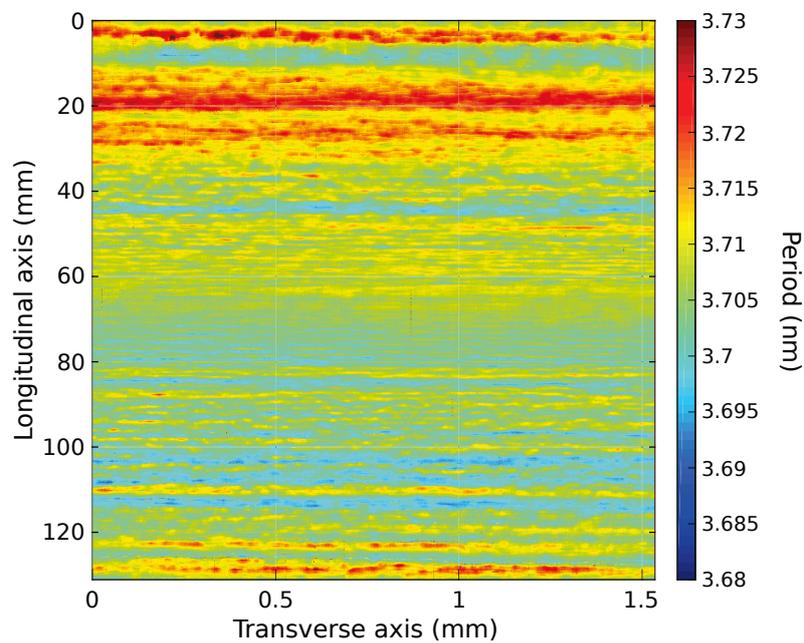


FIGURE B.2 – Cartographie des périodes locales de la multicouche 091124. Des zones avec différentes fréquences de défaut de période (épaisseur de bicouche) sont visibles verticalement. Entre les coordonnées de l'axe vertical de 0 à 40 mm, la fréquence des défauts est différente entre 40 et 70 mm, puis entre 70 à 80 mm, et entre 80 à 120 , mm.

que la multicouche 091124 est moins bien que la multicouche 091116. Alors, les lignes d'intensité produites peuvent provenir d'une structure de couche moins régulière, cela indépendamment de la qualité de la surface du substrat.

### **B.3 Résultat RCI : multicouche 091124**

Le déplacement du faisceau dans le détecteur est d'environ 650 pixels. Pour satisfaire l'hypothèse du lien biunivoque entre les pixels et les voxels il faut donc moyenniser 650 pixels. Alors la taille longitudinale d'un voxel est de 41.6 *mm*. Comme pour le miroir 091116, cette taille de voxel ne permet pas d'obtenir les erreurs de pente locales correspondantes avec notre problème. Le résultat montré figure (B.3) confirme cette observation.

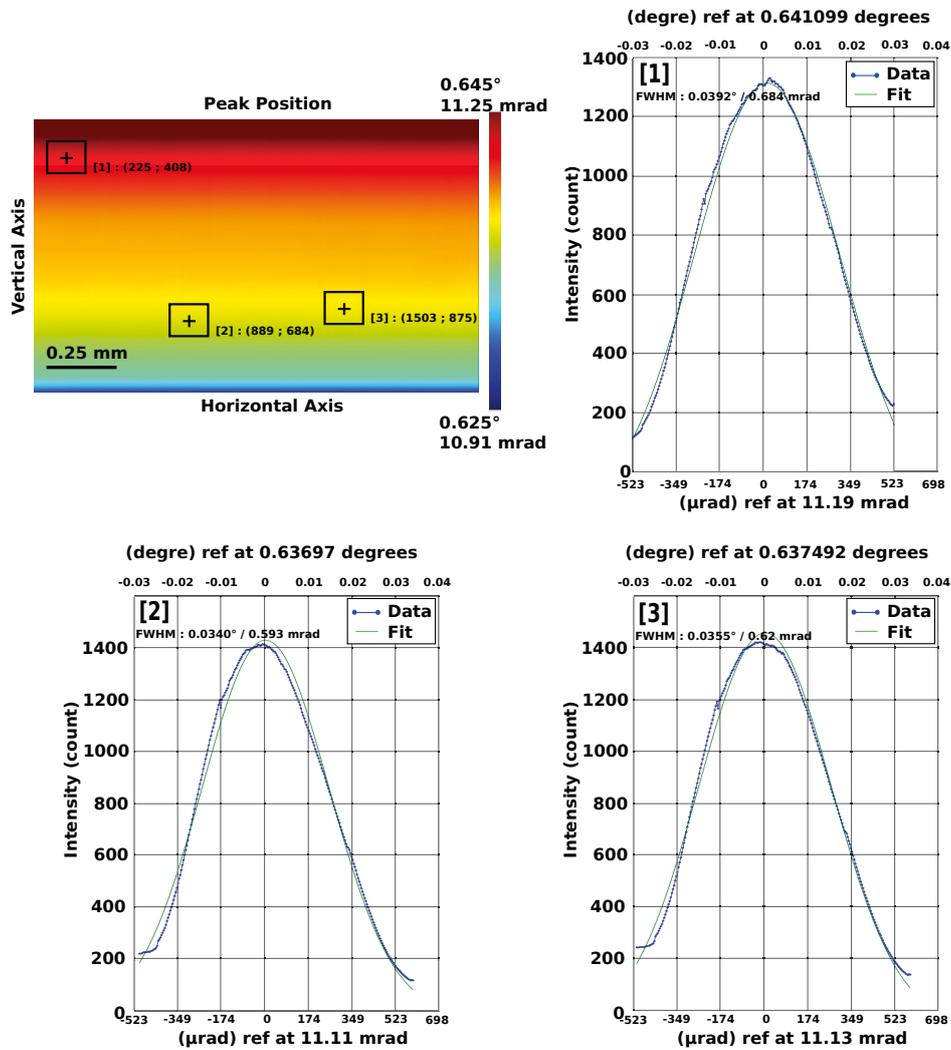


FIGURE B.3 – l'image en haut à gauche est le résultat des PPB obtenues pour chaque voxel de la multicouche 091124. Les "Rocking Curve" de trois points sont détaillées avec les courbes expérimentales et leurs fonctions ajustées de type log-normal sont montrées.

## **Annexe C**

### **Imagerie par diffraction de Bragg : traitements des données et contraintes**

## C.1 Traitements des données numériques à appliquer : RCI

La RCI (Rocking Curve Imaging) est l'application par imagerie de l'étude des "Rocking Curve". Plusieurs traitements doivent être appliqués sur les données pour supprimer des artefacts et distorsions induits par l'instrumentation.

### Renormalisation

Le flux d'électrons produisant le rayonnement synchrotron X diminue plus ou moins rapidement avec le temps selon le mode de répartition des électrons dans le booster synchrotron et la fréquence de re-injection d'électrons choisie. Le premier traitement de données consiste à renormaliser l'intensité mesurée par le détecteur pour tenir compte de la décroissance du courant d'électrons dans l'anneau.

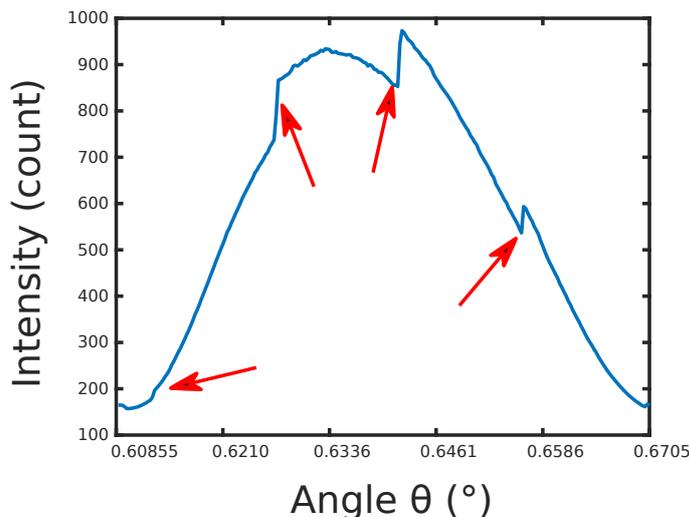


FIGURE C.1 – Courbe de réflectivité moyenne de la multicouche 091124, sans renormalisation avec quatre injections d'électrons (dans l'anneau de stockage du synchrotron) désignées par les flèches rouges.

### Réduction du bruit

Tous les instruments de mesure ajoutent du bruit aux intensités mesurées. Ici l'origine du bruit est la matrice de pixels qui compose le détecteur.

Ces derniers n'ayant pas la même réponse, ils introduisent un décalage dans l'intensité mesurée. Des 'points chauds' sont aussi présents lorsque qu'un pixel est endommagé et indiquent une valeur correspondant à une intensité saturée. Ces différences de réponse peuvent être identifiées au moyen d'une acquisition sans l'illumination de la caméra, par des rayons X. Puis il suffit de soustraire la contribution du bruit pour chaque image obtenue.

### **Interpolation**

Au regard de la largeur de la "Rocking Curve", la différence d'angle de la projection de la surface de la multicouche dans le plan de détection n'est pas négligeable. Ainsi, il y a dans le détecteur une variation du nombre de pixels illuminés durant la mesure. Il faut donc préalablement corriger cette différence de projection par une interpolation linéaire en fonction de l'angle de réflexion. C'est-à-dire que lorsque l'angle de réflexion augmente, un sur-échantillonnage permet d'augmenter le nombre de pixels illuminés ce afin de faire correspondre le nombre de pixels illuminés dans le détecteur pour tous les angles de réflexion. L'intensité virtuelle attribuée aux nouveaux pixels est calculée par régression linéaire.

Cela compense aussi la variation du flux de rayons X qui illumine la multicouche selon l'angle de rotation. Ainsi, l'intensité réfléchie est indirectement corrigée en fonction de l'intensité incidente.

### **Retrait des imperfections du faisceau**

L'étape importante du traitement est le retrait des contributions induites par le faisceau incident. En effet, le faisceau incident n'est pas parfait, son intensité n'est pas homogène comme le montre la figure (C.2). Pour détecter ces inhomogénéités, il faut obtenir une image du faisceau direct (c'est-à-dire sans échantillon), en positionnant le détecteur dans l'axe du faisceau incident. Il faut alors pondérer chaque pixel en fonction de l'intensité qu'il reçoit. Attention, lorsque ce faisceau est réfléchi par un échantillon, l'image du faisceau enregistrée par le détecteur se retrouve inversée (effet de la réflexion), ce qui complique le retrait des contributions induites par le faisceau incident. L'utilisation d'une fonction numpy flipud est généralement satisfaisante (numpy.flipud pour langage python est une fonction flip up - down).

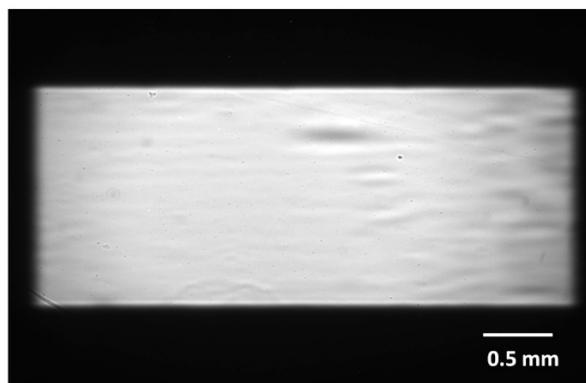


FIGURE C.2 – *Imperfections dans le faisceau incident. Les motifs d'intensité peuvent être produits par des défauts présents à la surface ou dans les cristaux de silicium du monochromateur ou par des hétérogénéités dans les fenêtres en kapton utilisées et montées aux extrémités des tubes sous vide ou sous hélium.*

### **Reconstruction des courbes**

Une fois ce traitement effectué, l'analyse de RCI correspond à la "Rocking Curve" de l'échantillon seul. L'analyse des données de RCI s'effectue avec un code développé par Thu Nhi Tran Caliste. Le principe, à répéter pour tous les pixels, consiste à tracer une courbe avec l'intensité mesurée dans un pixel selon l'angle de rotation de l'échantillon. Un détecteur de  $2048 \times 2048$  pixels produit plus de quatre millions de "Rocking Curve", chacune associée à un volume élémentaire de l'échantillon. Ensuite, pour chaque "Rocking Curve", un ajustement de courbe (curve fitting en anglais) est effectué. Celle-ci peut être effectuée avec une fonction de type gaussienne (mais introduit un biais sur la PPB) ou de type log-normal pour considérer l'asymétrie de la courbe de réflectivité (des cristaux et des multicouches). Cependant, le biais sur la PPB introduit avec un ajustement gaussien peut être négligé dans le cas des cristaux, du fait de la faible largeur de la courbe de réflectivité. L'ajustement de fonction permet alors de connaître la position centrale des "Rocking Curve" ainsi que la largeur à mi-hauteur. L'intensité intégrée est, quant à elle, directement calculée avec la somme des intensités reçues dans un pixel, pour chaque angle, plutôt que par intégration de la fonction ajustée.

Ces trois paramètres sont alors représentés sur une cartographie.

## C.2 Contraintes dans la mesure RCI

Nous avons vu que la reconstruction des propriétés du volume diffractant de l'échantillon était basée sur l'hypothèse d'un lien direct et unique entre un pixel du détecteur et un seul voxel de l'échantillon. Or, dans la mesure de RCI, plusieurs contraintes peuvent mettre en défaut cette hypothèse.

La première est l'étalement  $L_e$  d'un rayon par le volume diffractant illustré sur la figure (C.3). Avec  $L_e = \frac{Nd \sin 2\theta}{\sin \theta}$  où  $N$  est le nombre de bicouches,  $d$  la période,  $\theta$  est l'angle d'incidence.

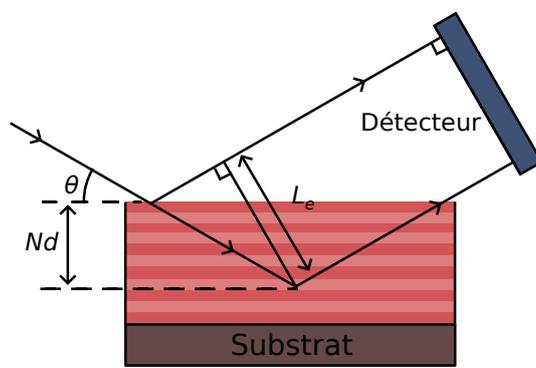


FIGURE C.3 – Étalement d'un rayon par une multicouche du fait de la diffraction dans le volume, où  $L_e$  est la largeur d'étalement.

Si cet étalement est supérieur à la taille d'un pixel dans le plan de détection, alors cela signifie que pour un photon X diffracté par l'échantillon, la contribution de volume diffractant sera étalée sur une surface supérieure à celle d'un pixel. Il y a alors pollution du pixel voisin, sans pouvoir séparer les contributions. La solution consistera à moyennner plusieurs pixels pour faire des pixels plus grands. En contrepartie, la résolution spatiale de la mesure sera diminuée.

Dans notre cas expérimental l'étalement  $L_e = 0.479\mu m$  est inférieur à la taille effective d'un pixel ( $0.75\mu m$ ).

### Erreur de ciblage $E_c$

La seconde contrainte possible que nous appellerons "erreur de ciblage" (illustrée figure (C.4)), est associée aux erreurs d'inclinaison et à la largeur de la "Rocking Curve" des multicouches. Elle traduit le fait qu'un voxel de l'échantillon ne cible pas le pixel qui lui est associé, à cause de son erreur

d'orientation. Ce cas est possible car la FWHM des "Rocking Curve" de la multicouche autorise des plans désorientés à diffracter en même temps que des plans correctement orientés. "L'erreur de ciblage"  $E_c$  est donc la distance entre les projections du voxel dans le plan de détection avec et sans désorientation.  $E_c = D \sin \delta\theta$ , où  $D$  est la distance échantillon-détecteur et  $\delta\theta$  l'angle de désorientation. Si "l'erreur de ciblage" est supérieure à la taille d'un pixel, alors la solution à appliquer est la même que pour un étalement  $L_e$ .

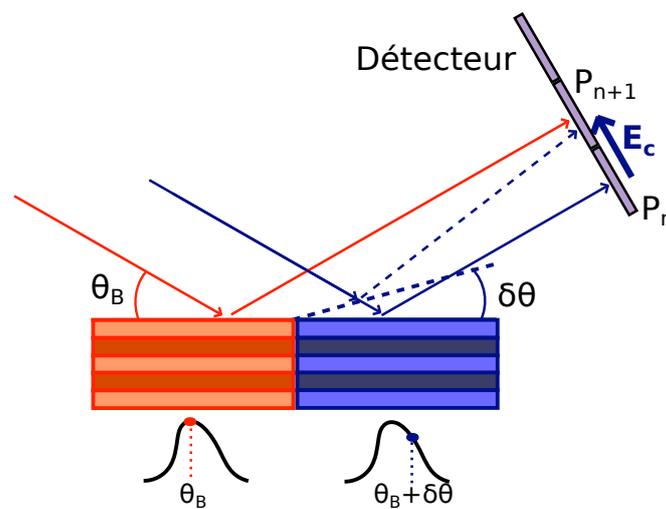


FIGURE C.4 – La multicouche contient deux voxels avec la période, dont le premier (orange) est en condition de Bragg et le second (bleu) a une structure avec une erreur de pente d'angle  $\delta\theta$ . Alors le pixel  $P_{n+1}$  est illuminé par le voxel en orange, mais aussi par le voxel voisin bleu car la "Rocking Curve" est large.  $E_c$  est alors la différence entre les positions illuminées par le voxel bleu avec une erreur de d'angle  $\delta\theta$  (rayon en pointillé) et sans erreur de pente (rayon en ligne continue).

Connaître l'erreur de ciblage suppose de connaître les désorientations existantes dans l'échantillon alors que celles-ci sont justement l'objectif de la mesure de RCI, donc à priori inconnues. Ainsi, la nécessité de moyenner plusieurs pixels dépendra de l'ordre de grandeur des désorientations attendues dans l'échantillon.

Pour les multicouches, nous considérons que les désorientations des couches sont principalement induites par le substrat. Or, nous supposons que les erreurs de pente à la surface du substrat de la multicouche 091116 n'excèdent pas  $1 \mu rad$ . Ainsi, pour  $\delta\theta < 1 \mu rad$ , l'erreur de ciblage  $E_{c_{max}} = 0.3 \mu m$  est deux fois plus petite que la taille d'un pixel.

## Largeur à mi-hauteur

Le paramètre limitant le plus les possibilités de caractérisation par RCI est la largeur à mi-hauteur de "Rocking Curve" d'une multicouche. En effet, comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 3 sur les différences entre les cristaux et les multicouches, la FWHM pour une multicouche est environ cent fois celle d'un cristal. La conséquence est alors que la gamme angulaire nécessaire pour parcourir la "Rocking Curve" d'une multicouche, produit un déplacement non négligeable du faisceau réfléchi dans le plan de diffraction (figure (3.6)). Ce déplacement est incompatible avec l'hypothèse d'un lien direct et unique entre les pixels et les voxels.

Pour résoudre ce problème il faut compenser ce déplacement par un déplacement équivalent du détecteur. Or cela correspond à une mesure  $\theta/2\theta$  Imaging et non plus à une mesure de RCI. La solution pour effectuer une mesure de RCI, tout en respectant notre hypothèse entre les pixels et les voxels, est là aussi de moyenner plusieurs pixels. On rappelle que le nombre de pixels à moyenner est donné par la relation 3.1 :  $N_{pix} = \frac{D \sin(\theta_{max} - \theta_0)}{t_{pix}}$  où,  $D$  est la distance multicouche-détecteur,  $t_{pix}$  la taille du pixel, et  $\theta_0, \theta_{max}$  sont respectivement le premier et le dernier angle de réflexion de la mesure de RCI. Pour la multicouche 091116 et avec la configuration expérimentale que nous avons, il faut moyenner 468 pixels dans la direction verticale. Cela a pour conséquence de réduire fortement la résolution spatiale qui est alors largement insuffisante pour l'étude des défauts des miroirs multicouches.

Ce problème de largeur de "Rocking Curve" est amplifié par une grande distance multicouche-détecteur. Il est donc préférable de réduire au maximum cette distance et de s'assurer que le faisceau réfléchi reste dans le champ de vue du détecteur, pour toute la mesure de RCI.

## C.3 Traitements des données numériques à appliquer $\theta/2\theta$ Imaging

De la même manière que pour la mesure de RCI, plusieurs traitements doivent être appliqués sur les données. Il faut, comme pour la RCI, effectuer la renormalisation de l'intensité réfléchie, supprimer le bruit du détecteur, interpoler les images en fonction de l'angle et retirer les imperfections du faisceau incident.

## Recentrage

Dans notre cas, nous n'avons pas réellement fait la mesure  $\theta/2\theta$  Imaging. En effet, nous avons seulement fait l'acquisition de mesure de RCI, en prenant soin de garder dans le champ de vue du détecteur, le faisceau diffracté, pour toute l'amplitude angulaire de la "Rocking Curve". Alors, pour reconstituer la mesure  $\theta/2\theta$  Imaging, un dernier traitement est à effectuer. Il consiste à reproduire (numériquement) le déplacement du détecteur qui suit alors le faisceau diffracté lors de la rotation de la multicouche. Alors, le faisceau réfléchi doit apparaître immobile durant la rotation et ce par un recentrage des images du faisceau obtenues pour la mesure de RCI.

## Reconstruction des courbes

La reconstruction des courbes de réflectivité  $\theta/2\theta$  Imaging est effectuée selon le même principe que pour les "Rocking Curve" et avec le même script.

Comme pour la RCI, l'ajustement de courbe permet de connaître la position centrale des courbes  $\theta/2\theta$ , ainsi que la largeur à mi-hauteur et l'intensité intégrée. Ces trois paramètres des courbes  $\theta/2\theta$  peuvent être représentés sur une cartographie représentant une projection des voxels de la multicouche.

## C.4 Contraintes dans la mesure $\theta/2\theta$ Imaging

Les contraintes de mesure sont les mêmes que pour la RCI en ce qui concerne la largeur d'étalement  $L_e$  et l'erreur de ciblage  $E_c$ . Or, dans notre configuration expérimentale elles ne sont pas contraignants pour la mesure.

La largeur à mi-hauteur des "Rocking Curve" est fortement contraignante pour la RCI, mais comme il a été expliqué auparavant, la mesure  $\theta/2\theta$  Imaging compense exactement le déplacement du faisceau réfléchi lors de la rotation. Alors, l'hypothèse essentielle de relation biunivoque entre les voxels de la multicouche et les pixels du détecteur est respectée. Les résultats obtenus sont donc donnés pour la résolution spatiale maximale disponible avec le détecteur utilisé.

## C.5 Différents types de défaut rencontrés

Les défauts suivants ont été observés dans les résultats d'imagerie  $\theta/2\theta$  de la multicouche 091116 (voir chapitre 3, §3.4.4). Ces défauts sont visibles lorsque la reconstruction des courbes de réflectivité a été effectuée, sans le retrait des imperfections du faisceau (figure C.5).

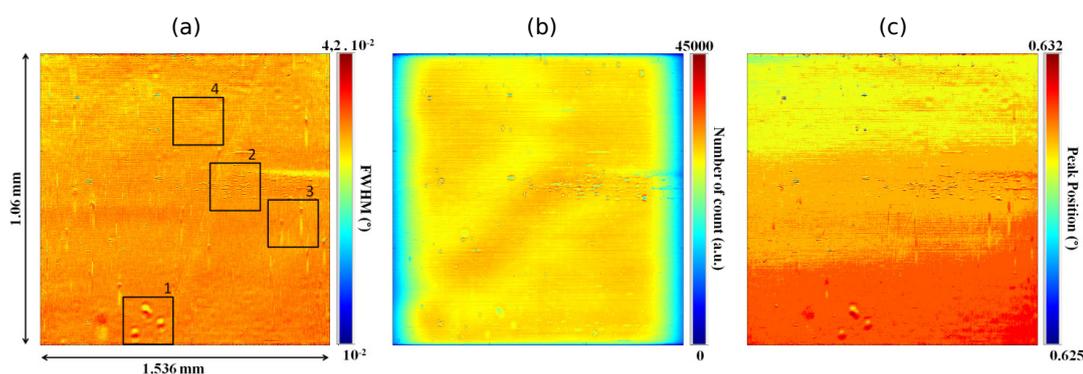


FIGURE C.5 – Cartographies des paramètres des courbes  $\theta/2\theta$  locales des voxels de la multicouche 091116 projetés (pour  $\theta = 0.662$  degré) dans le plan de détection où (a) est la cartographie de la largeur à mi-hauteur, (b) celle de l'intensité intégrée et (c) celle de la position du pic de Bragg. Différentes zones numérotées de 1 à 4 sur la cartographie (a) montrent différents phénomènes liés à des impuretés.

- **1<sup>er</sup> défaut**

Ce type de défaut (figure (C.6)) est fixe dans le faisceau réfléchi contrairement aux défauts de la zone numérotée 3. Leur origine probable est la présence d'impuretés dans le faisceau incident (figure (C.6.b)), car des effets fixes ne peuvent être produits, que dans le faisceau incident ou dans la multicouche. Or, si la multicouche possède un défaut particulier susceptible de produire l'effet de la figure (C.6.a), alors ce défaut est facilement identifiable par d'autres méthodes expérimentales.

Le plus probable est donc la présence d'impuretés sur des fenêtres en kapton.

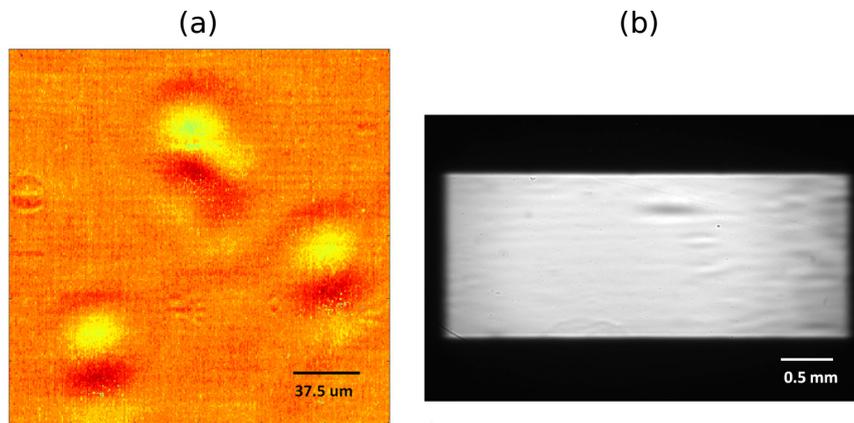


FIGURE C.6 – (a) défaut visible dans la cartographie de la largeur à mi-hauteur, des résultats de mesure  $\theta/2\theta$  Imaging pour la multicouche 091116. (b) faisceau incident qui illumine la multicouche. Les défauts visibles en (a), sont le fruit d'impuretés qui apparaissent dans le faisceau incident. Ces impuretés ont plusieurs origines possibles, comme les fenêtres en kapton.

- **2<sup>ème</sup> défaut**

Le second type de défaut est illustré en détail sur la figure (C.7.a) et est lui aussi fixe dans le faisceau réfléchi. Cependant on peut aisément supposer qu'il s'agit de défaut à la surface du miroir multicouche, du fait de la symétrie verticale qu'ils présentent. Cette symétrie s'explique figure (C.7.b) par la différence de projection de l'objet (en rouge) à la surface de la multicouche selon que le défaut est illuminé par le faisceau incident puis diffracté (rayons en vert) ou bien illuminé par le faisceau diffracté (rayons en orange). Ce principe a déjà été observé dans d'autres situations expérimentales. L'origine la plus probable est une contamination de la surface de la multicouche.

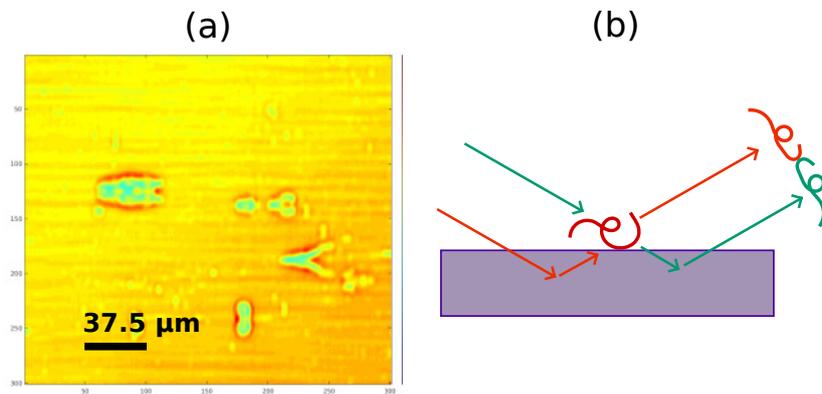


FIGURE C.7 – (a) défaut visible dans la cartographie de la largeur à mi-hauteur des résultats de mesure  $\theta/2\theta$  Imaging pour la multicouche 091116 (figure (C.5).a). Ce défaut présente la particularité d'une symétrie d'axe horizontal qui traduit sa présence à la surface du miroir. (b) représentation schématique d'un objet à la surface d'un miroir (par diffraction dans le volume) produisant une figure avec symétrie.

- **3<sup>eme</sup> défaut**

Ce troisième type de défaut que l'on observe sur la figure (C.8.a) a la particularité d'être étalé dans la direction de la diffraction. Cela traduit un déplacement relatif de ces défauts par rapport au faisceau diffracté. Or ce déplacement est introduit par le "recentrage" et signifie que ces défauts sont en réalité fixes, dans le champ de détection. Cela conduit à supposer que l'origine de ces défauts est dans l'ensemble optique du détecteur, composé du scintillateur, d'optique visible et du capteur CCD.

De plus ces défauts ne sont pas visibles dans le bruit de mesure du détecteur. En effet, le bruit de mesure que l'on prend soin de retirer dans le traitement des données, est le bruit introduit par la partie active du capteur CCD, sans illumination. Or les défauts ici décrits ont besoin d'être illuminés pour devenir observables.

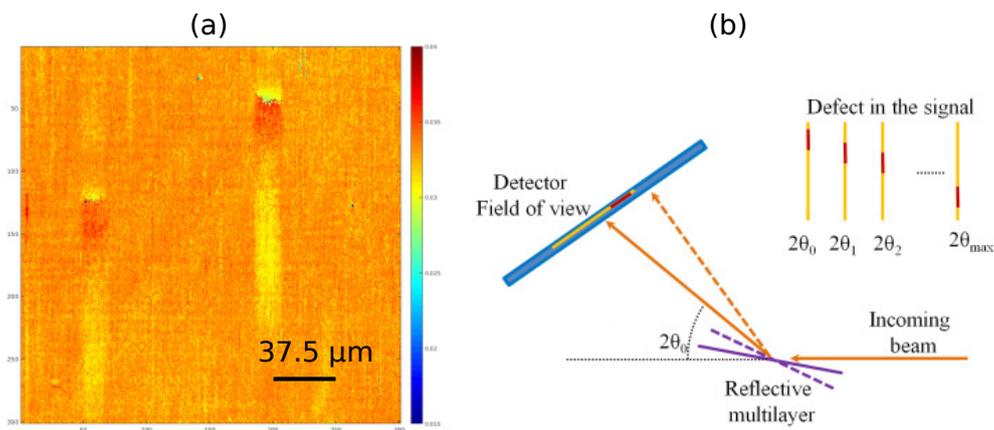


FIGURE C.8 – (a) Troisième type de défaut visible dans la cartographie de la largeur à mi-hauteur des résultats obtenus pour la multicouche 091116 (figure (C.5.a)). (b) montre que la cause a des effets fixes dans le champ de détection, mais le déplacement virtuel du "recentrage" produit cet effet d'étalement dans la direction verticale. L'origine de ces défauts est dans l'ensemble, scintillateur, optique et capteur électronique.

- **4<sup>ème</sup> défaut**

Les défauts de la figure (C.9) (page : 196) sont présents partout dans le faisceau diffracté. Ils sont immobiles par rapport au faisceau, ce qui suggère que leur origine est soit dans le faisceau incident, soit dans le miroir multicouche. Or il n’y a pas dans le faisceau incident de trace d’objet susceptible de produire ces stries, dans tout le faisceau diffracté.

En plus de ressembler aux lignes d’intensité produites par les multicouches, les défauts de la figure (C.9) sont dans la multicouche. Ce sont donc des défauts susceptibles d’être à l’origine des lignes d’intensité qui font l’objet de ce projet de thèse.

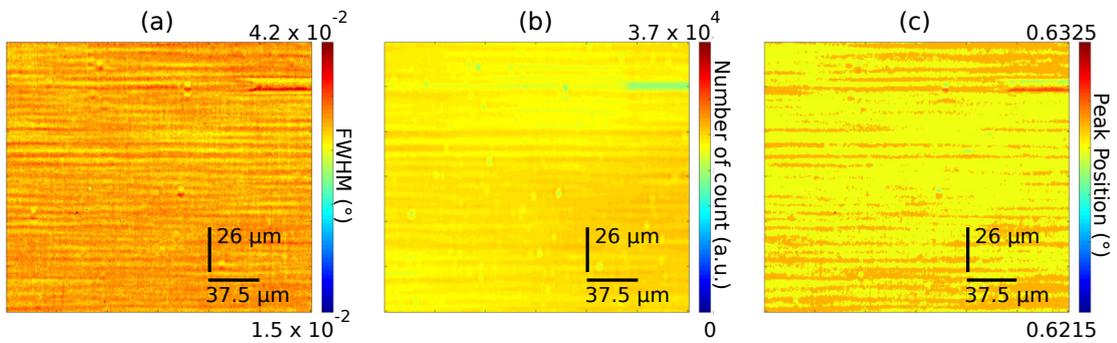


FIGURE C.9 – (a), (b) et (c) sont respectivement les cartographies de la quatrième zone de la figure (C.5), pour la largeur à mi-hauteur, de l’intensité intégrée et de la PPB. Les défauts visibles sont ceux susceptibles d’être à l’origine des lignes d’intensité qui font l’objet de ce projet de thèse.



## **Annexe D**

# **Solution expérimentale à la RCI pour les multicouches**

## D.1 Solution expérimentale

La solution expérimentale proposée pour palier au problème de la largeur à mi-hauteur des courbes de réflectivité des miroirs multicouches (voir chapitre 3, §3.4.1) est décrite dans la figure (D.1).

De part la largeur à mi-hauteur de la fonction de transmission, le cristal devient un filtre directionnel des rayons X réfléchis (par la multicouche). Le cristal doit être fixe comme la caméra. En absorbant le faisceau réfléchi par un voxel lorsque l'angle de réflexion est différent de l'angle de Bragg (du voxel) le cristal évite que le voxel illumine (hors condition de Bragg) plusieurs pixels du détecteur. Ainsi, un voxel illumine un seul pixel et le cristal permet de retrouver le lien bi-univoque entre les voxels et les pixels. Le cristal doit être positionné dans le faisceau réfléchi et en condition de diffraction de Laue pour les faisceaux réfléchis à l'angle de Bragg de la multicouche.

Un cristal présente l'avantage d'une fonction de transmission dont la largeur à mi-hauteur est cent fois inférieure à la largeur à mi-hauteur des courbes de réflectivité des multicouches. Cependant, les cristaux ne sont pas parfaits et peuvent introduire des imperfections dans le faisceau réfléchi. Mais ces imperfections pourront être supprimées lors du traitement des données pour le retrait des imperfections du faisceau (voir §C.1, annexe C) si le faisceau direct a été mesuré avec le détecteur muni du cristal.

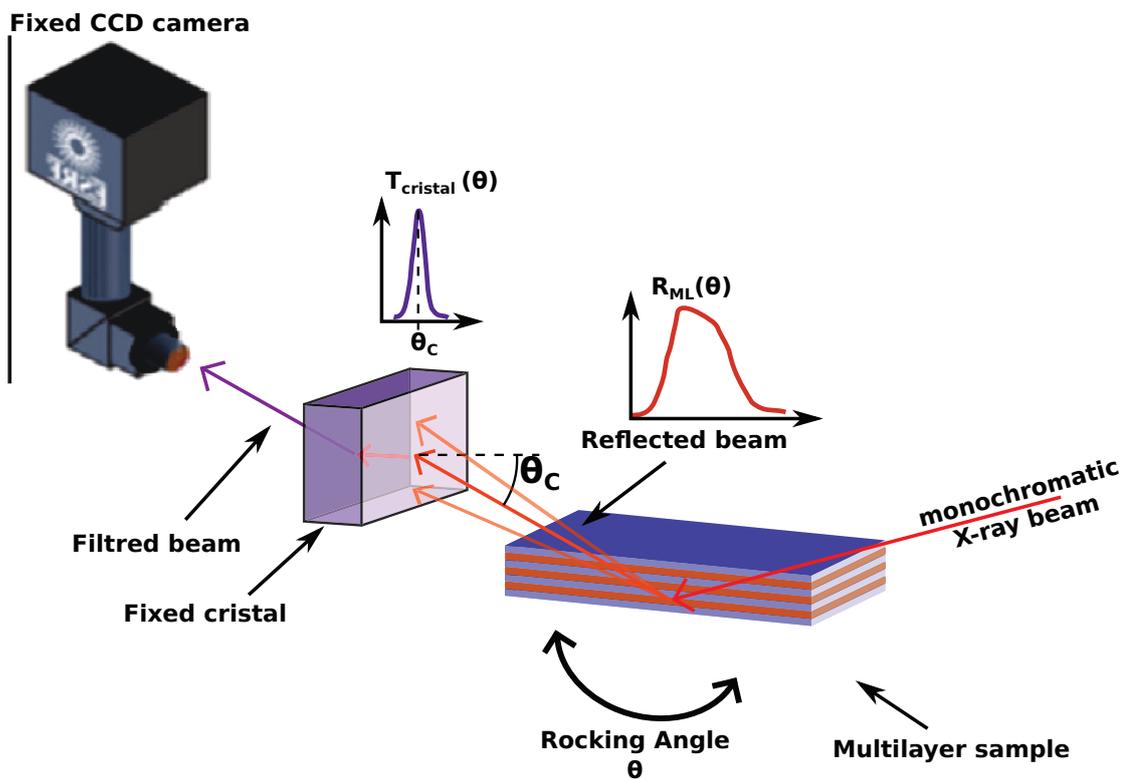


FIGURE D.1 – Montage expérimental proposé pour la caractérisation de miroir multicouche par la méthode de RCI. Ce montage se différencie du montage figure (2.1) par l'ajout d'un cristal fixe en position de diffraction de Laue.



## **Annexe E**

# **Guide d'utilisation et Nouvelles variables**

## E.1 Détails d'utilisation pour les simulations

### E.1.1 Généralités sur les simulations

Les modules de modélisation développés dans cette thèse permettent de simuler les défauts de hauteur dans un miroir multicouche, de prévoir les effets induits dans le faisceau réfléchi après propagation et de considérer les effets de cohérence spatiale de la source. L'ensemble des scripts sont disponibles sur la plate-forme github.

( [www.github.com/LogicalMind64/multilayer](http://www.github.com/LogicalMind64/multilayer) )

remarque :

La mention "filemane" correspond à un nom de fichier qui doit être défini avec la variable "Fe" dans le fichier setup.sh .

Le caractère # est remplacé par un numéro, en cas de calcul avec les largeurs de cohérence spatiale de la source, ce afin d'identifier les résultats.

Pour effectuer ces simulations, il est nécessaire de travailler sur une machine Linux (pour les fichiers .sh), d'avoir un compilateur pour langage C (pour les fichiers .c), et python (pour les fichiers .py).

Tous les modules peuvent fonctionner seuls ou ensembles. Le schéma de la figure (E.1) montre l'algorithme de fonctionnement des différents modules. Trois programmes composent cet algorithme (tt-int.c, Pro\_F.py, Coh.py) ; ils simulent (respectivement), la multicouche, la propagation de Fresnel et la cohérence de la source (considération des intensités mutuelles). Deux autres fichiers bashs (runjob.sh, setup.sh) permettent la coordination des programmes et leur exécution.

### E.1.2 Simulation des multicouches avec défauts

La simulation des multicouches avec défauts se fait avec le programme tt-int.c. Ce programme est orienté objet et utilise les fichiers tt-int.h et params.h lors de la compilation. Le programme a besoin de charger les données de défaut de hauteur présentes dans un fichier "Topo\_H.dat".

Lors d'une simulation, la configuration expérimentale doit être définie dans le fichier shell (bash) : setup.sh. Celle ci sera chargée dans le shell et téléchargée par le programme tt-int. La compilation et l'exécution du programme se fait à partir du fichier setup.sh. Il y a plusieurs options dans l'exécution de l'exécutable : takagi-taupin. Celles ci sont renseignées dans les annexes de la thèse de Markus Osterhoff.

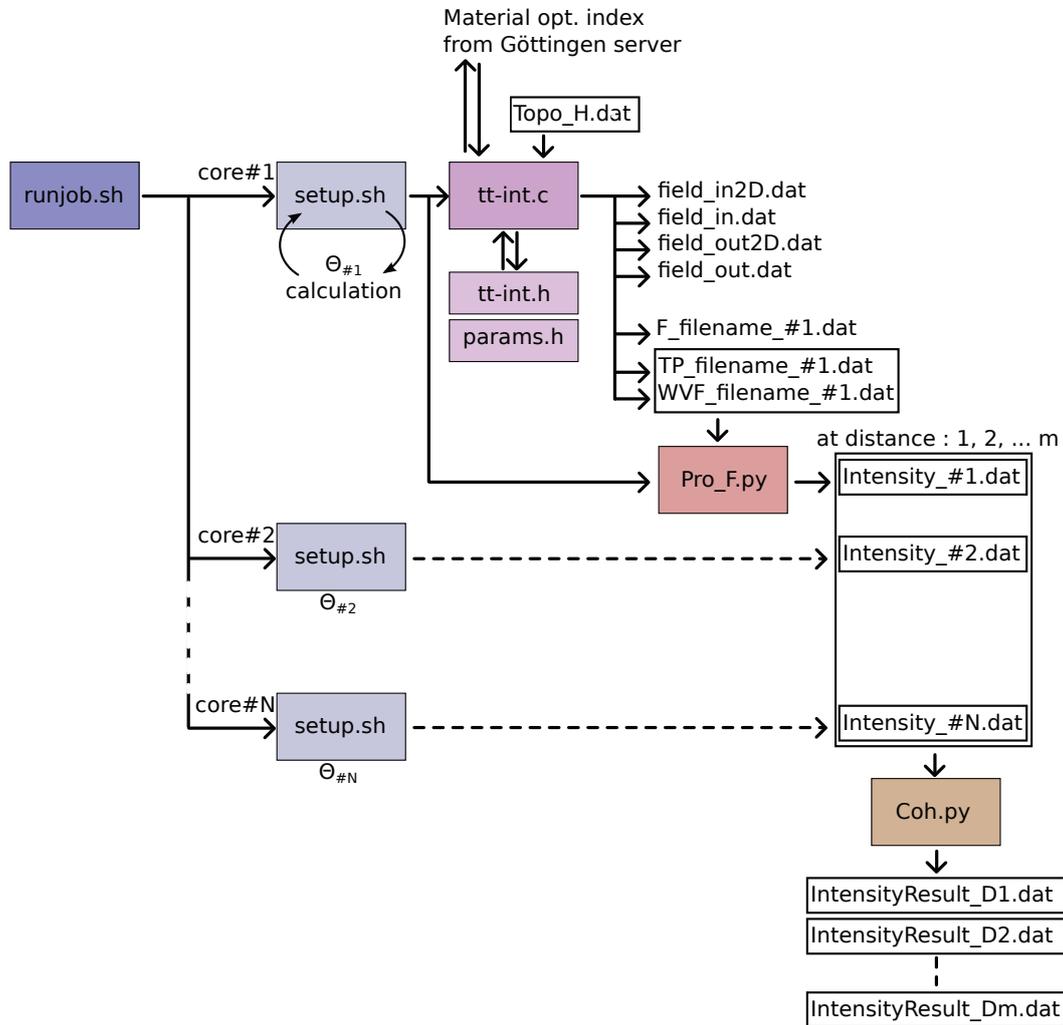


FIGURE E.1 – Schéma bloc de fonctionnement des modules de simulation avec parallélisation des calculs. L'ensemble des paramètres de simulation sont à définir dans le fichier 'setup.sh'. Lorsque les effets de cohérence partielle du faisceau ont besoin d'être considérés, les calculs sont distribués sur plusieurs cœurs au moyen de 'runjob.sh'. Chaque cœur effectue les calculs pour une source ponctuelle et monochromatique dont l'angle d'illumination de la multicouche est calculé en fonction des propriétés de cohérence du faisceau et de l'échantillonnage de la source. Une fois les simulations effectuées sur chaque cœur, le script python 'Coh.py' compile l'ensemble pour donner les intensités dans le détecteur avec les effets de cohérence partiel du faisceau, pour chaque distance, dans un fichier séparé.

Les résultats du programme tt-int sont sauvegardés dans différents fichiers. Les fichiers originaux des champs d'ondes (incidente et réfléchi) à la surface de la multicouche sont (respectivement) répertoriés dans les fichiers "field\_in.dat" et "field\_out.dat" .

Les fichiers "field\_\*\*2D.dat" sont les champs d'ondes dans le plan longueur et profondeur de la multicouche (plus de détails sur ces fichiers sont donnés dans les annexes de la thèse de Markus Osterhoff).

Pour les simulations de multicouche avec défauts, la multicouche a trois dimensions (voir chapitre 5, figure (4.2) pour plus de détails sur la géométrie). Les résultats de l'onde réfléchi seule sont sauvegardés dans le fichier "WVF\_filename\_#.dat" pour être utilisés par les autres programmes.

Le format des résultats est sur quatre colonnes, soit :

numéro de tranche (sans unité)	coordonnée longitudinale ( $\mu m$ )	amplitude ( $u.a$ ) ( $u.a$ )	phase ( $rad$ ) ( $rad$ )
-----------------------------------	---	----------------------------------	------------------------------

Un fichier "TP\_filename\_#.dat" est créé avec les paramètres nécessaires pour le programme de propagation :

1. vecteur d'onde ( $\mu m$ ),
2. nombre de points directions transverse ( $\vec{u}_y$ ),
3. nombre de points direction longitudinale ( $\vec{u}_x$ ),
4. pas, direction  $\vec{u}_y$  ( $\mu m$ ),
5. angle de réflexion ( $rad$ ),
6. pas, direction  $\vec{u}_x$  ( $\mu m$ ),
7. numéro d'échantillonnage de source,
8. première distance de propagation ( $\mu m$ ),
9. dernière distance de propagation ( $\mu m$ ),
10. nombre de distances à simuler,
11. nombre de pixels dans la caméra, direction verticale,
12. nombre de pixels dans la caméra, direction horizontale,
13. taille verticale des pixels ( $\mu m$ ),
14. taille horizontale des pixels ( $\mu m$ ),
15. FWHM de la fonction d'étalement du point du détecteur.

### **E.1.3 Simulation de propagation des résultats de tt-int**

L'exécution du programme de propagation de Fresnel est lancée automatiquement dans le fichier setup.sh à la fin du programme tt-int. Trois arguments sont nécessaires pour exécuter ce programme python : Le nom du fichier contenant l'onde réfléchie (WVF\_filename\_#.dat), le nom du fichier de propagation (TP\_filename\_#.dat) et le numéro d'échantillonnage de la source.

Les résultats de propagation pour toutes les distances souhaitées sont sauvegardés dans un fichier "Intensity2D\_#.dat".

### **E.1.4 Simulation avec la cohérence spatiale de la source**

Les simulations avec les cohérences spatiales partielles de la source sont parallélisées sur un nombre de cœurs défini par l'échantillonnage (spatial) de la source.

Le fichier shell, runjob.sh, exécute les commandes du fichier setup.sh sur différents cœurs (et donc dans différents shells), ce en fonction du numéro d'échantillonnage et des paramètres prédéfinis dans setup.sh. Ce dernier calcule l'angle d'incidence correspondant selon le point considéré de la source.

Une fois les calculs des programmes tt-int et Pro\_F.py terminés, le programme Coh.py utilise tous les fichiers Intensity2D\_#.dat pour reproduire les effets de largeur de cohérence partielle. Les résultats sont sauvegardés dans des fichiers "IntensityResult\_Dm.dat" en fonction de la distance "m".

## E.2 Nouvelles variables

Variable environnement	signification
config_geometry_s1	distance source - centre du miroir (non utilisé avec l'option <code>-flat</code> )
config_geometry_s2	distance centre du miroir - foyer (non utilisé avec l'option <code>-flat</code> )
config_geometry_theta	angle d'incidence rasant (rad)
config_illumination_center	centre d'illumination, longueur de miroir inversée (=2.0 pour nos simulations)
config_illumination_factor	espace entre plusieurs faisceaux incidents, longueur de miroir inversée (=1.0 pour nos simulations)
config_illumination_file	(non utilisée)
config_illumination_intens	intensité incidente (u.a)
config_illumination_method	(non utilisée ou doit être <code>"self"</code> )
config_illumination_number	nombre de faisceaux incidents (=1 pour nos simulations)
config_illumination_shm	(non utilisée)
config_illumination_width	largeur du faisceau incident (=0.001 pour nos simulations)
config_layers_material1	premier matériau ( <code>"W"</code> pour nos simulations)
config_layers_material2	second matériau ( <code>"B4C"</code> pour nos simulations)
config_layers_number	nombre de bi-couches
config_layers_ratio	ratio d'épaisseur de couche
config_mirror_length	longueur du miroir ( $\mu m$ )
config_physic_wavelength	longueur d'onde dans le vide ( $\mu m$ )
config_shm_fieldout	clef de segmentation de l'amplitude réfléchie (=56156 pour nos simulations)
config_shm_plotdata	clef de segmentation pour l'intensité dans la structure (=56156 pour nos simulations)
config_simulation_gridpointss	nombre de points, direction longitudinale
config_simulation_gridpointst	nombre de points, direction de la profondeur
config_xocd_hostname	nom d'hôte pour les constantes optiques ( <code>"k-raum.org"</code> pour nos simulations)
config_xocd_port	numéro de port pour les constantes optiques (=42001 pour nos simulations)

config_vertical_coherence	largeur de cohérence spatiale verticale ( $\mu m$ )
config_horiz_coherence	largeur de cohérence spatiale horizontale ( $\mu m$ )
config_distance_coherence	distance de la source - miroir ( $\mu m$ )
config_step_coherence	nombre de points d'échantillonnage de la source
config_divergence_correction	(non utilisée)
config_Fname_MLtopo	nom du fichier défauts de hauteur (type .dat ou .txt)
config_interpolation_rate	rapport d'échantillonnage de points, direction longitudinale (rapport : $\frac{config\_simulation\_gridpointss}{nombre\ de\ points\ de\ fauts\ de\ hauteur}$ )
config_detector_NxCAM	nombre de pixel détecteur (vertical)
config_detector_NyCAM	nombre de pixel détecteur (horizontal)
config_detector_SxCAM	taille de pixel détecteur (verticale)
config_detector_SyCAM	taille de pixel détecteur (horizontale)
config_FWHMpsf	largeur à mi-hauteur fonction de la d'étalement du point du détecteur ( $\mu m$ )
config_detector_DistanceMIN	première distance ( $\mu m$ )
config_detector_DistanceMAX	dernière distance ( $\mu m$ )
config_distance_step	nombre de distances de propagation
Fe	identificatif commun des fichiers produits avec une simulation (exemple : nom d'échantillon)
config_SimulationFile="F-\$Fe.dat"	nom du fichier, résumé de simulation (nom : F-indicatifcommun.dat)
config_TTfieldfile="WVF-\$Fe-\$p.dat"	nom du fichier, résultat de simulation (nom : WVF-indicatifcommun-k.dat, où k dépend du numéro d'échantillonnage de la source)
config_TTfeaturefile="TP-\$Fe-\$p.dat"	nom du fichier, paramètres de propagation (nom : TP-indicatifcommun-k.dat, où k dépend du numéro d'échantillonnage de la source)

## E.3 Exemple

runjob.sh

```
#!/bin/sh

#rm OAR*

export config_step_coherence=5

for p in `seq 1 $config_step_coherence`;
do
  oarsub -l core=1,walltime=2:30:0 " runjob.sh $p $config_step_coherence"
  sleep 30
done

### MUTUAL INTENSITY SUMMATION ###
python Coh.py "$config_SimulationFile"
```

setup.sh

```
#!/bin/sh

export LD_LIBRARY_PATH=/Users/osterhof/.root/lib

export config_geometry_s1=40000000
export config_geometry_s2=40000000
export config_geometry_theta=0.0111
export config_illumination_center=2.0
export config_illumination_factor=1.0
export config_illumination_file=""
export config_illumination_intens=1.0
export config_illumination_method="self"
export config_illumination_number=1
export config_illumination_shm=""
export config_illumination_width=0.001
export config_layers_material1="W"
export config_layers_material2="B4C"
export config_layers_number=20
export config_layers_ratio=0.5
export config_mirror_length=94822
export config_physic_wavelength=0.00008265
export config_shm_fieldout=56156
export config_shm_plotdata=56155
export config_simulation_gridpointss=5000000
export config_simulation_gridpointst=1200
export config_xocd_hostname="k-raum.org"
export config_xocd_port=42001

export config_vertical_coherence=31
export config_horiz_coherence=9
export config_distance_coherence=40000000
#export config_step_coherence=5
export config_divergence_correction=0

export config_Fname_MLtopo="Topo_SPKL_091124.dat" ## Take care of matrix orientation !!!
export config_interpolation_rate=1
```

```

export config_detector_NxCAM=2048
export config_detector_NyCAM=2048
export config_detector_SxCAM=0.75
export config_detector_SyCAM=0.75
export config_FWHMpsf=1.5
export config_detector_DistanceMIN=200000
export config_detector_DistanceMAX=10000000
export config_distance_step=20
Fe="SPKL_091124_"

export config_SimulationFile="F-$Fe.dat"

SSize='awk -v lambda=$config_physic_wavelength -v Coh_dist=$config_distance_coherence
-v Coh_V=$config_vertical_coherence 'BEGIN{print lambda*Coh_dist/(2*Coh_V)}''
Size5sig='awk -v SSize=$SSize 'BEGIN{print SSize/(2*sqrt(2*log(2)))*5}''
Sin_angle='awk -v Size5sig=$Size5sig -v Coh_dist=$config_distance_coherence
'BEGIN{print Size5sig/sqrt(Coh_dist*Coh_dist+Size5sig*Size5sig)}''
S_angle='awk -v X=$Sin_angle 'BEGIN{print atan2(X,sqrt(1-X*X))}''

#p=$1
echo "run index = $p"

#### TAKAGI TAUPIN ####
export config_TTfieldfile="WVF-$Fe-$p.dat"
export config_TTfeaturefile="TP-$Fe-$p.dat"
THETA='awk -v Coh_step=$p -v S_angle=$S_angle -v THETA1=$config_geometry_theta -v
Coh_sampl=$config_step_coherence -v stepC=$config_step_coherence -v thetaSimu=
$config_geometry_theta 'BEGIN{ if(stepC==1) {print thetaSimu;} else {print
(Coh_step-1)*S_angle/Coh_sampl+THETA1-S_angle/2;} }''
echo $THETA

echo "Takagi Taupin"
make -q || make || exit && echo
./takagi-taupin -cp $@ --flat --thetadiff=$THETA

#### FRESNEL PROPAGATION ####
echo "Fresnel Propagation"
python ProERGO2_Fresnel.py "WVF-$Fe-$p.dat" "TP-$Fe-$p.dat" "$p" "$Fe"

#cat OAR*

```

---

# Bibliographie

- [1] Eberhard Spiller, Armin Segmüller, Jack Rife, and Rolf-Peter Haelbich. Controlled fabrication of multilayer soft-x-ray mirrors. Applied Physics Letters, 37(11) :1048–1050, 1980.
- [2] James H Underwood and Troy W Barbee Jr. Soft x-ray imaging with a normal incidence mirror. Nature, 294(5840) :429, 1981.
- [3] X-ray reflectivity of multilayer,  
[http://henke.lbl.gov/optical\\_constants/multi2.html](http://henke.lbl.gov/optical_constants/multi2.html).
- [4] Jean Daillant and Alain Gibaud. X-ray and neutron reflectivity : principles and applications, volume 770. Springer, 2008.
- [5] K Vestli and E Ziegler. Optimization of multilayer reflectivity and bandpass for soft to hard x-ray applications [0.1–200 keV]. Review of Scientific Instruments, 67(9) :3356–3356, 1996.
- [6] CK Carniglia and Joseph H Apfel. Maximum reflectance of multilayer dielectric mirrors in the presence of slight absorption. JOSA, 70(5) :523–534, 1980.
- [7] Aleksandr V Vinogradov. Multilayer x-ray optics. Quantum electronics, 32(12) :1113, 2002.
- [8] P.H Berning. Physics of thin films. ACADEMIC PRESS, New York, 1963.
- [9] Masaki Yamamoto and Takeshi Namioka. Layer-by-layer design method for soft-x-ray multilayers. Applied optics, 31(10) :1622–1630, 1992.
- [10] Igor V Kozhevnikov and Claude Montcalm. Design of x-ray multilayer mirrors with maximal integral efficiency. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 624(1) :192–202, 2010.
- [11] Igor V Kozhevnikov, Inna N Bukreeva, and Eric Ziegler. Design of x-ray supermirrors. Nuclear Instruments and Methods in Physics

- Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 460(2-3) :424–443, 2001.
- [12] Christian Morawe, Eric Ziegler, Jean-Christophe Peffen, and Igor V Kozhevnikov. Design and fabrication of depth-graded x-ray multilayers. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 493(3) :189–198, 2002.
- [13] Ch Morawe and Markus Osterhoff. Curved graded multilayers for x-ray nano-focusing optics. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 616(2-3) :98–104, 2010.
- [14] Ch Morawe, JP Guigay, V Mocella, and C Ferrero. An analytical approach to estimating aberrations in curved multilayer optics for hard x-rays : 2. interpretation and application to focusing experiments. Optics express, 16(20) :16138–16150, 2008.
- [15] JP Guigay, Ch Morawe, V Mocella, and C Ferrero. An analytical approach to estimating aberrations in curved multilayer optics for hard x-rays : 1. derivation of caustic shapes. Optics Express, 16(16) :12050–12059, 2008.
- [16] Markus Osterhoff, Christian Morawe, Claudio Ferrero, and Jean-Pierre Guigay. Optimized x-ray multilayer mirrors for single nanometer focusing. Optics letters, 38(23) :5126–5129, 2013.
- [17] Christian Morawe and Markus Osterhoff. Hard x-ray focusing with curved reflective multilayers. X-ray Optics and Instrumentation, 2010, 2010.
- [18] Peter J Kelly and R Derek Arnell. Magnetron sputtering : a review of recent developments and applications. Vacuum, 56(3) :159–172, 2000.
- [19] Hans Henrik Andersen and Helge L Bay. Sputtering yield measurements. In Sputtering by particle bombardment I, pages 145–218. Springer, 1981.
- [20] Peter David Townsend, John Clive Kelly, and Nicholas Edmund Whittam Hartley. Ion implantation, sputtering and their applications. Academic Press, 1976.
- [21] Jian Shen, Zheng Gai, and Jürgen Kirschner. Growth and magnetism of metallic thin films and multilayers by pulsed-laser deposition. Surface science reports, 52(5-6) :163–218, 2004.

- [22] Bretislav Heinrich and J Anthony C Bland. Ultrathin magnetic structures II: Measurement techniques and novel magnetic properties, volume 2. Springer Science & Business Media, 2006.
- [23] James G Lunney. Pulsed laser deposition of metal and metal multilayer films. Applied surface science, 86(1-4) :79–85, 1995.
- [24] R Dietsch, Th Holz, H Mai, S Hopfe, R Scholz, B Wehner, and H Wendrock. X-ray optical properties of c/c-multilayers prepared by pulsed laser deposition (pld). MRS Online Proceedings Library Archive, 382, 1995.
- [25] Claude Montcalm, Patrick A Kearney, JM Slaughter, Brian T Sullivan, M Chaker, Henri Pépin, and Charles M Falco. Survey of ti-, b-, and y-based soft x-ray–extreme ultraviolet multilayer mirrors for the 2-to 12-nm wavelength region. Applied optics, 35(25) :5134–5147, 1996.
- [26] Eric Ziegler. Multilayers for high heat load synchrotron applications. Optical Engineering, 34(2) :445–453, 1995.
- [27] Inga Knorr Michael Reese Peter Gromann Klaus Mann Tobias Liese, Volker Radisch and Hans-Ulrich Krebs. Development of laser deposited multilayer zone plate structures for soft x-ray radiation. Applied Surface Science, 257(12) :5138–5141, 2011.
- [28] Ch Morawe and J-Ch Peffen. Thickness control of large area x-ray multilayers. In Advances in X-Ray/EUV Optics and Components IV, volume 7448, page 74480H. International Society for Optics and Photonics, 2009.
- [29] Ch Morawe, Ch Borel, and J-Ch Peffen. The new esrf multilayer deposition facility. In Advances in X-Ray/EUV Optics and Components II, volume 6705, page 670504. International Society for Optics and Photonics, 2007.
- [30] Christian Morawe and Markus Osterhoff. Curved graded multilayers for x-ray nano-focusing optics. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 616 :98–104, 2009.
- [31] Paul Kirkpatrick and Albert Vincio Baez. Formation of optical images by x-rays. J. Opt. Soc. Am, 38 :766–773, 1948.
- [32] Saša Bajt, Daniel G Stearns, and Patrick A Kearney. Investigation of the amorphous-to-crystalline transition in mo/si multilayers. Journal of Applied Physics, 90(2) :1017–1025, 2001.
- [33] John A Thornton. High rate thick film growth. Annual review of materials science, 7(1) :239–260, 1977.

- [34] VV Kondratenko, Yu P Pershin, OV Poltseva, AI Fedorenko, EN Zubarev, SA Yulin, IV Kozhevnikov, SI Sagitov, VA Chirkov, VE Levashov, et al. Thermal stability of soft x-ray mo-si and mosi 2-si multilayer mirrors. Applied optics, 32(10) :1811–1816, 1993.
- [35] Hisataka Takenaka and Tomoaki Kawamura. Thermal stability of mo/c/si/c multilayer soft x-ray mirrors. Journal of electron spectroscopy and related phenomena, 80 :381–384, 1996.
- [36] Zuimin Jiang, Xiaoming Jiang, Wenhan Liu, and Ziqin Wu. Thermal stability of multilayer films pt/si, w/si, mo/si, and w/c. Journal of applied physics, 65(1) :196–200, 1989.
- [37] JB Kortright, St Joksch, and E Ziegler. Stability of tungsten/carbon and tungsten/silicon multilayer x-ray mirrors under thermal annealing and x-radiation exposure. Journal of applied physics, 69(1) :168–174, 1991.
- [38] Benjawan Kjornrattanawanich and Saša Bajt. Structural characterization and lifetime stability of mo/y extreme-ultraviolet multilayer mirrors. Applied optics, 43(32) :5955–5962, 2004.
- [39] Christian Morawe. Mirror and multilayer x-ray optics. Spring-8, 11 Oct., 2007.
- [40] DK Bowen and BK Tanner. Characterization of engineering surfaces by grazing-incidence x-ray reflectivity. Nanotechnology, 4(4) :175, 1993.
- [41] BK Tanner and JM Hudson. Characterization of magnetic multilayers by grazing incidence x-ray reflectivity. IEEE transactions on magnetics, 28(5) :2736–2741, 1992.
- [42] L Nevot, B Pardo, and J Corno. Characterization of x-uv multilayers by grazing incidence x-ray reflectometry. Revue de physique appliquée, 23(10) :1675–1686, 1988.
- [43] E Spiller. Characterization of multilayer coatings by x-ray reflection. Revue de physique appliquée, 23(10) :1687–1700, 1988.
- [44] Lyman G Parratt. Surface studies of solids by total reflection of x-rays. Physical review, 95(2) :359, 1954.
- [45] SK Ghose and BN Dev. X-ray standing wave and reflectometric characterization of multilayer structures. Physical Review B, 63(24) :245409, 2001.
- [46] M Wormington, DK Bowen, and BK Tanner. Principles and performance of a pc-based program for simulation of grazing incidence

- x-ray reflectivity profiles. MRS Online Proceedings Library Archive, 238, 1991.
- [47] DL Beke, GA Langer, M Kis-Varga, A Dudas, P Nemes, L Daróczy, Gy Kerekes, and Z Erdélyi. Thermal stability of amorphous and crystalline multilayers produced by magnetron sputtering. Vacuum, 50(3-4) :373–383, 1998.
- [48] Regina Soufli, Sherry L Baker, David L Windt, Eric M Gullikson, Jeff C Robinson, William A Podgorski, and Leon Golub. Atomic force microscopy characterization of zerodur mirror substrates for the extreme ultraviolet telescopes aboard nasa’s solar dynamics observatory. Applied optics, 46(16) :3156–3163, 2007.
- [49] Alexander Rack, Timm Weitkamp, Markus Riotte, Daniil Grigoriev, Tatjana Rack, Lukas Helfen, Tilo Baumbach, Reiner Dietsch, Thomas Holz, Markus Krämer, et al. Comparative study of multilayers used in monochromators for synchrotron-based coherent hard x-ray imaging. Journal of synchrotron radiation, 17(4) :496–510, 2010.
- [50] Per Spanne and Mark L Rivers. Computerized microtomography using synchrotron radiation from the nsls. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, 24 :1063–1067, 1987.
- [51] U Bonse, R Nusshardt, F Busch, R Pahl, QC Johnson, JH Kinney, RA Saroyan, and MC Nichols. Optimization of ccd-based energy-modulated x-ray microtomography. Review of Scientific Instruments, 60(7) :2478–2481, 1989.
- [52] W Graeff and K Engelke. Handbook on synchrotron radiation, vol. 4, edited by s. ebashi, m. koch and e. rubenstein, 1991.
- [53] Ulrich Bonse and Frank Busch. X-ray computed microtomography ( $\mu$ ct) using synchrotron radiation (sr). Progress in biophysics and molecular biology, 65(1-2) :133–169, 1996.
- [54] Peter Cloetens, Raymond Barrett, José Baruchel, Jean-Pierre Guigay, and Michel Schlenker. Phase objects in synchrotron radiation hard x-ray imaging. Journal of Physics D : Applied Physics, 29(1) :133, 1996.
- [55] Andreas Koch. Lens coupled scintillating screen-ccd x-ray area detector with a high detective quantum efficiency. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 348(2-3) :654–658, 1994.

- [56] Heung-Rae Lee, Barry P Lai, Wenbing Yun, Derrick C Mancini, and Zhonghou Cai. X-ray microtomography as a fast three-dimensional imaging technology using a ccd camera coupled with a cdwo4 single-crystal scintillator. In Developments in X-ray tomography, volume 3149, pages 257–264. International Society for Optics and Photonics, 1997.
- [57] C Raven, A Snigirev, I Snigireva, P Spanne, A Souvorov, and V Kohn. Phase-contrast microtomography with coherent high-energy synchrotron x rays. Applied Physics Letters, 69(13) :1826–1828, 1996.
- [58] P Spanne, C Raven, I Snigireva, and A Snigirev. In-line holography and phase-contrast microtomography with high energy x-rays. Physics in Medicine & Biology, 44(3) :741, 1999.
- [59] Brian P Flannery and WG Roberge. Observational strategies for three-dimensional synchrotron microtomography. Journal of applied physics, 62(12) :4668–4674, 1987.
- [60] Brian P Flannery, Harry W Deckman, Wayne G Roberge, and KEVIN L D’AMICO. Three-dimensional x-ray microtomography. Science, 237(4821) :1439–1444, 1987.
- [61] Ray Conley, Chian Liu, Jun Qian, Cameron M Kewish, Albert T Macrander, Hanfei Yan, Hyon Chol Kang, Jörg Maser, and G Brian Stephenson. Wedged multilayer laue lens. Review of Scientific Instruments, 79(5) :053104, 2008.
- [62] Jan Sijbers and Andrei Postnov. Reduction of ring artefacts in high resolution micro-ct reconstructions. Physics in Medicine & Biology, 49(14) :N247, 2004.
- [63] Alexander Rack, Timm Weitkamp, I Zanette, Ch Morawe, A Vivo Rommeveaux, P Tafforeau, P Cloetens, E Ziegler, T Rack, A Cecilia, et al. Coherence preservation and beam flatness of a single-bounce multilayer monochromator (beamline id19—esrf). Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 649(1) :123–127, 2011.
- [64] A Rack, L Assoufid, W-K Lee, B Shi, C Liu, Ch Morawe, R Kluender, R Conley, and N Bouet. Hard x-ray multilayer mirror round-robin on the wavefront preservation capabilities of w/b4c coatings. Radiation Physics and Chemistry, 81(11) :1696–1702, 2012.
- [65] Alexander Rack, Lahsen Assoufid, Reiner Dietsch, Timm Weitkamp, S Bauer Trabelsi, T Rack, F Siewert, M Krämer, Th Holz, I Zanette,

- et al. Study of multilayer-reflected beam profiles and their coherence properties using beamlines id19 (esrf) and 32-id (aps). In AIP Conference Proceedings, volume 1437, pages 15–17. AIP, 2012.
- [66] A Rack, Ch Morawe, L Mancini, D Dreossi, DY Parkinson, AA MacDowell, F Siewert, T Rack, T Holz, M Krämer, et al. Reflection on multilayer mirrors : beam profile and coherence properties. In Advances in X-Ray/EUV Optics and Components IX, volume 9207, page 92070V. International Society for Optics and Photonics, 2014.
- [67] A Rack, T Weitkamp, L Assoufid, T Rack, I Zanette, Ch Morawe, R Kluender, and C David. Protocol to study wavefront preservation capabilities of reflective x-ray optics with coherent synchrotron light. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 710 :101–105, 2013.
- [68] Rafael Kluender, Fabio Masiello, Pierre Van Vaerenbergh, and Jürgen Härtwig. Measurement of the spatial coherence of synchrotron beams using the talbot effect. physica status solidi (a), 206(8) :1842–1845, 2009.
- [69] A Rack, T Weitkamp, M Riotte, T Rack, R Dietsch, T Holz, M Krämer, F Siewert, M Meduna, Ch Morawe, et al. Micro-imaging performance of multilayers used as monochromators for coherent hard x-ray synchrotron radiation. In Advances in X-Ray/EUV Optics and Components V, volume 7802, page 78020M. International Society for Optics and Photonics, 2010.
- [70] Anatoly A Snigirev. Coherent properties of the third-generation synchrotron radiation sources : optical requirements. In Optics for High-Brightness Synchrotron Radiation Beamlines II, volume 2856, pages 26–34. International Society for Optics and Photonics, 1996.
- [71] Ch Morawe, R Barrett, K Friedrich, R Klünder, and A Vivo. Spatial coherence studies on x-ray multilayers. In Advances in X-Ray/EUV Optics and Components VI, volume 8139, page 813909. International Society for Optics and Photonics, 2011.
- [72] E Ziegler, C Morawe, O Hignette, P Cloetens, and R Tucoulou. Multilayer x-ray optics for high energy third-generation synchrotron sources : the state of the art. In Ninth International Conference on Production Engineering, Precision Science and Technology for Perfect Surfaces, Japan Society for Precision Engineering Proceedings, volume 3, pages 285–291, 1999.

- [73] Kazuto Yamauchi, Kazuya Yamamura, Hidekazu Mimura, Yasuhisa Sano, Akira Saito, Katsuyoshi Endo, Alexei Souvorov, Makina Yabashi, Kenji Tamasaku, Tetsuya Ishikawa, et al. Wave-optical evaluation of interference fringes and wavefront phase in a hard-x-ray beam totally reflected by mirror optics. Applied optics, 44(32) :6927–6932, 2005.
- [74] Anton Barty, Regina Soufli, Tom McCarville, Sherry L Baker, Michael J Pivovarov, Peter Stefan, and Richard Bionta. Predicting the coherent x-ray wavefront focal properties at the linac coherent light source (lcls) x-ray free electron laser. Optics express, 17(18) :15508–15519, 2009.
- [75] Oliver S Heavens. Optical properties of thin solid films. Courier Corporation, 1991.
- [76] Florin Abelès. La théorie générale des couches minces. Journal de Physique et le Radium, 11(7) :307–309, 1950.
- [77] L Nevot and P Croce. Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons x. application à l'étude du polissage de quelques verres silicates. Revue de Physique appliquée, 15(3) :761–779, 1980.
- [78] Max Born and Emil Wolf. Principles of Optics, 7th. 2008.
- [79] Dwight W Berreman. Computing x-ray reflectance of focusing multilayer films. Optical Engineering, 25(8) :258933, 1986.
- [80] DW Berreman. Dynamical theory of x-ray diffraction in flat, focusing, and distorted crystals by abelès's matrix method. Physical Review B, 14(10) :4313, 1976.
- [81] AT Macrander, ER Minami, and DW Berreman. Dynamical x-ray rocking curve simulations of nonuniform ingaas and ingaasp using abelès' matrix method. Journal of applied physics, 60(4) :1364–1368, 1986.
- [82] Krassimir Stoev and Kenji Sakurai. Recent theoretical models in grazing incidence x-ray reflectometry. The Rigaku Journal, 14(2) :22–37, 1997.
- [83] Petr Mikulík and Tilo Baumbach. X-ray reflection by multilayer surface gratings. Physica B : Condensed Matter, 248(1-4) :381–386, 1998.
- [84] Xianbo Shi, Ruben Reininger, Manuel Sanchez del Rio, and Lahsen Assoufid. A hybrid method for x-ray optics simulation : combining geometric ray-tracing and wavefront propagation. Journal of synchrotron radiation, 21(4) :669–678, 2014.

- [85] André Authier. Dynamical theory of x-ray diffraction. International Tables for Crystallography, pages 626–646, 2006.
- [86] A Guinier. Théorie et technique de la radiocristallographie ; Dunod, Paris, 3. Aufl, 1964.
- [87] D Lübbert, T Baumbach, J Härtwig, E Boller, and E Pernot.  $\mu\text{m}$ -resolved high resolution x-ray diffraction imaging for semiconductor quality control. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, 160(4) :521–527, 2000.
- [88] J Hoszowska, AK Freund, E Boller, JPF Sellschop, G Level, J Härtwig, RC Burns, M Rebak, and J Baruchel. Characterization of synthetic diamond crystals by spatially resolved rocking curve measurements. Journal of Physics D : Applied Physics, 34(10A) :A47, 2001.
- [89] Daniel Lübbert, Claudio Ferrari, Petr Mikulík, Petra Pernot, Lukas Helfen, Nicola Verdi, Dusan Korytár, and Tilo Baumbach. Distribution and burgers vectors of dislocations in semiconductor wafers investigated by rocking-curve imaging. Journal of applied crystallography, 38(1) :91–96, 2005.
- [90] M Calamiotou, N Chrysanthakopoulos, G Papaioannou, and J Baruchel. Dynamics of photodeformations and space charge field in photorefractive fe : Li nb o 3 studied with synchrotron area diffractometry. Journal of Applied Physics, 102(8) :083527, 2007.
- [91] Rafael T Kluender, Armelle Philip, Jacques Meyssonier, and José Baruchel. Three-dimensional distortion measurements by section rocking curve imaging : Application to ice crystals. physica status solidi (a), 208(11) :2505–2510, 2011.
- [92] Thu Nhi Tran Thi, Sébastien Dubois, José Baruchel, Nicolas Enjalbert, Bruno Fernandez, Tobias Schüllli, and Tamzin A Lafford. Czochralski and mono-like p-type and n-type silicon solar cells : Relationship between strain and stress induced by the back contact, and photovoltaic performance. Solar Energy Materials and Solar Cells, 135 :17–21, 2015.
- [93] Atsushi Momose. Recent advances in x-ray phase imaging. Japanese Journal of Applied Physics, 44(9R) :6355, 2005.
- [94] UetMHART Bonse and M Hart. An x-ray interferometer. Applied Physics Letters, 6(8) :155–156, 1965.
- [95] Atsushi Momose, Tohoru Takeda, Yuji Itai, and Keiichi Hirano. Phase-contrast x-ray computed tomography for observing biological soft tissues. Nature medicine, 2(4) :473–475, 1996.

- [96] A Snigirev, I Snigireva, V Kohn, S Kuznetsov, and I Schelokov. On the possibilities of x-ray phase contrast microimaging by coherent high-energy synchrotron radiation. Review of scientific instruments, 66(12) :5486–5492, 1995.
- [97] Sebastien Berujon, Hongchang Wang, Simon Alcock, and Kawal Sawhney. At-wavelength metrology of hard x-ray mirror using near field speckle. Optics express, 22(6) :6438–6446, 2014.
- [98] P Guigay. Fourier-transform analysis of fresnel diffraction patterns and in-line holograms. Optik, 49 :121–125, 1977.
- [99] Peter Cloetens. Contribution to phase contrast imaging, reconstruction and tomography with hard synchrotron radiation : principles, implementation and applications. Ph. D. thesis, 1999.
- [100] Jean Pierre Guigay, Max Langer, Renaud Boistel, and Peter Cloetens. Mixed transfer function and transport of intensity approach for phase retrieval in the fresnel region. Optics letters, 32(12) :1617–1619, 2007.
- [101] Sébastien Bérignon, Eric Ziegler, Roberto Cerbino, and Luca Peverini. Two-dimensional x-ray beam phase sensing. Physical review letters, 108(15) :158102, 2012.
- [102] Kaye S Morgan, David M Paganin, and Karen KW Siu. X-ray phase imaging with a paper analyzer. Applied Physics Letters, 100(12) :124102, 2012.
- [103] Sebastien Berujon and Eric Ziegler. Grating-based at-wavelength metrology of hard x-ray reflective optics. Optics letters, 37(21) :4464–4466, 2012.
- [104] Sebastien Berujon and Eric Ziegler. Near-field speckle-scanning-based x-ray imaging. Physical Review A, 92(1) :013837, 2015.
- [105] Markus Osterhoff. Wave optical simulations of x-ray nano-focusing optics, volume 9. Universitätsverlag Göttingen, 2012.
- [106] Markus Osterhoff, Christian Morawe, Claudio Ferrero, and Jean-Pierre Guigay. Wave-optical theory of nanofocusing x-ray multilayer mirrors. Optics letters, 37(17) :3705–3707, 2012.
- [107] Michael F Cohen and Donald P Greenberg. The hemi-cube : A radiosity solution for complex environments. In ACM Siggraph Computer Graphics, volume 19, pages 31–40. ACM, 1985.
- [108] Robert L Cook, Thomas Porter, and Loren Carpenter. Distributed ray tracing. In ACM SIGGRAPH computer graphics, volume 18, pages 137–145. ACM, 1984.

- [109] Tomoyuki Nishita and Eihachiro Nakamae. Continuous tone representation of three-dimensional objects taking account of shadows and interreflection. In ACM SIGGRAPH Computer Graphics, volume 19, pages 23–30. ACM, 1985.
- [110] Jung-Ho Cho and Suck-Joo Na. Implementation of real-time multiple reflection and fresnel absorption of laser beam in keyhole. Journal of Physics D : Applied Physics, 39(24) :5372, 2006.
- [111] Gregory J Ward, Francis M Rubinstein, and Robert D Clear. A ray tracing solution for diffuse interreflection. ACM SIGGRAPH Computer Graphics, 22(4) :85–92, 1988.
- [112] Nick Rawlinson and Malcolm Sambridge. Multiple reflection and transmission phases in complex layered media using a multistage fast marching method. Geophysics, 69(5) :1338–1350, 2004.
- [113] Satio Takagi. A dynamical theory of diffraction for a distorted crystal. J. Phys. Soc. Jap., 26 :1239–1253, 1969.
- [114] Daniel Taupin. Prévission de quelques images de dislocations par transmission des rayons x (cas de laue symétrique). Acta Cryst., 23 :25–35, 1967.
- [115] VV Protopopov and VA Kalnov. X-ray multilayer mirrors with an extended angular range. Optics communications, 158(1-6) :127–140, 1998.
- [116] Charles Galton Darwin. The theory of x-ray reflection, part ii. Phil. Mag., 27 :675–690, 1914.
- [117] Norio Kato. Pendellösung fringes in distorted crystals ii. application to two-beam cases. J.Phys. Soc. Jap., 19(1) :67, 1964.
- [118] William H Zachariasen. Theory of X-ray Diffraction in Crystals. Courier Corporation, 2004.
- [119] Authier André. Dynamical Theory of X-Ray Diffraction. University Press, 2001.
- [120] Zinovi i Grigor'evich Pinsker. Dynamical Scattering of X-Rays in Crystals. 1978.
- [121] Jürgen Härtwig. Hierarchy of dynamical theories of x-ray diffraction for deformed and perfect crystals. J. Phys. D : Appl. Phys., 34(10A), 2001.
- [122] Heinrich Schlangenotto. Dynamische theorie der röntgenbeugung für deformierte kristalle zeitschrift für physik. 203(1) :17–36, 1967.

- [123] Jerzy Gronkowski. Propagation of x-rays in distorted crystals under dynamical diffraction. Physics Reports, 206(1) :1–41, 1991.
- [124] Albert T. Macrander Qun Shen Stefan Vogt G. Brian Stephenson Hanfei Yan, Jörg Maser and Hyon Chol Kang. Takagi-taupin description of x-ray dynamical diffraction from diffractive optics with large numerical aperture. Physical Review B, 76 :115438, 2007.
- [125] Satio Takagi. Dynamical theory of diffraction applicable to crystals with any kind of small distortion. Acta Cryst., 15 :1311-1312, 1962.
- [126] Yves Epelboin. A varying-step algorithm for numerical integration of takagi-taupin equations. Acta Crystallography Section A, 39(5) :761–767, 1983.



**Titre :** Modélisation numérique et caractérisation des défauts dans les miroirs multicouches en vue de leur application en imagerie X cohérente

**Mots clés :** Miroirs multicouches rayons X, caractérisation tri-dimensionnelle des multicouches, mesure de front d'onde, modélisation numérique, simulation de défauts, Takagi-Taupin.

**Résumé :** Les miroirs multicouches trouvent de nombreuses applications utilisant les rayons X produits par les synchrotrons et les lasers à électrons libres et doivent relever de nouveaux challenges apparus avec l'amélioration de ces sources de rayonnement. Pour étudier les causes des contrastes d'intensité produits dans le faisceau réfléchi, des mesures expérimentales et une modélisation numérique ont été effectuées. Plusieurs méthodes d'analyse de la structure des multicouches et du front d'onde réfléchi par un miroir multicouches ont été mises en œuvre sur la ligne de lumière BM05 de l'ESRF. Les méthodes de mesure de 'Rocking Curve Imaging' et ' $\theta/2\theta$  Imaging' ont été appliquées et adaptées pour la première fois aux miroirs multicouches. Des mesures du front d'onde réfléchi par une multicouche ont été effectuées à partir des techniques d'holographie et de tavelure en champ proche. Les résultats obtenus permettent d'observer les effets de phase produits par les multicouches ainsi que leurs origines et de reconstruire la topographie de défauts de hauteur d'un miroir multicouches par l'utilisation du modèle numérique développé durant cette thèse. Un modèle numérique

basé sur les équations de Takagi-Taupin a été modifié pour tenir compte de défauts dans la structure multicouches d'un miroir. Des simulations de défauts simples ont été effectuées afin de caractériser les performances et les limites du modèle numérique. La propagation et la cohérence du faisceau réfléchi ont été simulées. Les résultats expérimentaux et simulés ont alors permis de montrer que les défauts de hauteur dans la structure multicouches des miroirs constituent la cause principale des contrastes d'intensité. Les simulations effectuées conduisent à conclure que les effets de phase induits par les défauts de hauteur dans une multicouche sont analogues à ceux produits par ces même défauts de hauteur sur une surface réfléchissante.

Ces modèles et ces simulations peuvent être utilisés pour spécifier des caractéristiques de défaut de hauteur permettant de minimiser le contraste d'intensité observé après réflexion. Les techniques expérimentales développées permettront de caractériser avec les rayons X les futures multicouches.

**Title :** Numerical modelling and characterization of multilayer mirror defects for coherent X-ray imaging applications

**Keywords :** X-ray multilayer mirror, 3D multilayer characterization, wave-front measurement, numerical modelling, defects simulation, Takagi-Taupin.

**Abstract :** Multilayer mirrors find numerous X-ray applications in synchrotron and X-rays free electron lasers. These multilayer optical devices must take up new challenges raised with the upgrade of these radiation sources. To study the origin of intensity contrast in reflected beam, experimental measurements and numerical modeling were performed. Several techniques for multilayer structure characterization have been implemented at the ESRF beamline BM05. Measurements methods based on 'Rocking Curve Imaging' and ' $\theta/2\theta$ ' Imaging were performed and applied for the first time to multilayer mirrors. Measurements of the wave-front reflected by multilayer were performed using holography and near field speckle tracking techniques. The results obtained allowed observation of the phase effects induced by multilayer reflection of their origin and to reconstruct the topography of the height defects within a multilayer mirror using the numerical model developed in the

course of this PhD thesis. A numerical model based on Takagi-Taupin equations was modified to account for defects present in the multilayer mirror structure. Simulations for simple defects were performed to evaluate performance and limits of the numerical model. The propagation and the coherence of the reflected beam were simulated. The measurement and simulation results show the height defects to be the main cause of the intensity contrast observed. The simulations also lead to conclude that the phase effect induced by height defects in a multilayer are analog to the ones produced by the same height defects of a reflecting surface.

Such modelling and simulations can be useful to specify defect features able to minimize the reflected intensity contrast. The experimental techniques developed will allow the X-ray characterization of future multilayer mirrors.

