

088



Université 08 Mai 1945 Guelma  
Faculté des Sciences et de l'Ingénierie  
Département des Sciences Exactes

## MEMOIRE

Présenté en vue de l'obtention du diplôme de

## MAGISTER

---

### Etude qualitative et caractérisation des multicouches nanométriques dans le domaine des rayons X à travers le calcul de leurs courbes de réflexion

---

Physique  
Option : Optique des Couches Minces  
Année 2006

Par  
M<sup>elle</sup> Azizi Ratiba.

Directeur de mémoire : Pr. A. Meddour



### Devant le jury:

<b>R. Lahiouel</b>	M.C	Université de Guelma	<b>Président</b>
<b>A. Meddour</b>	Professeur	Université de Guelma	<b>Rapporteur</b>
<b>M. Ghers</b>	Professeur	Université de Annaba	<b>Examineur</b>
<b>S. Djerroud</b>	M.C	Université de Guelma	<b>Examineur</b>
<b>N. Boucerredj</b>	M.C	Université de Annaba	<b>Examineur</b>

## DEDICACE

*A mon père,  
A ma mère,  
A ma famille,  
A mes amis.*

## Remerciements

*On ne peut produire un travail sans la collaboration de nombreuses personnes. Les conseils et les encouragements qu'elles peuvent prodiguer sont souvent indispensables. Il me fait plaisir de leur exprimer ma gratitude.*

*J'aimerai d'abord manifester ma plus profonde reconnaissance et Je tiens a remercier tout particulièrement mon encadreur : M<sup>r</sup>. A. Meddour , Professeur à l'Université de Guelma, qui a dirigé mon mémoire avec enthousiasme. La confiance qu'il m'a faite et son implication m'ont permis de mener ce travail dans les meilleures conditions. Il a toujours fait preuve d'une importante disponibilité au cours de ce travail et pendant la rédaction de ce manuscrit et il a dirigé mes recherches avec efficacité et gentillesse. Que son apport inestimable soit ici remercié.*

*Je suis très reconnaissant à :M<sup>r</sup>.R .Lahiouel, maître de conférences à l'Université de Guelma d'avoir accepté de présider mon jury de magistère. Je remercie également M<sup>r</sup>. Ghers professeur à l'Université de Annaba de m'avoir honoré de sa présence en acceptant de faire partie de ce jury.*

*Mes remerciements vont aussi à M<sup>m</sup>. Djerroud , maître de conférences à l'Université de Guelma et à M<sup>r</sup>. Boucerredj maître de conférences à l'Université de Annaba , ou ils trouvent ici ma gratitude la plus sincère.*

*Je remercie K Zanete qui ma soutenu en m'aidant à régler mes lacunes en fortran, ma gratitude va à toutes les personnes ayant contribué à l'avancement de ce travail ; je cite : A. Boudjahem, , M. Benhamida , A. Hadad, A. Hamidan, L .Kahlaras, I. Breki , S. Ghanai, N. Belaadi. Enfin un grand merci à tous ceux que j'ai côtoyé durant ces années.*

*"On peut voir trois principaux objets dans l'étude de la vérité :*

*l'un, de la découvrir, quand on la cherche,*

*de la démontrer quand on la possède*

*le dernier, de la discerner d'avec le faux quand on l'examine"*

Blaise Pascal (1623 – 1662) *Philosophe / Mathématicien - Physicien*

## **Résumé.**

Nous avons fait une étude théorique destinée à prédire des miroirs de Bragg dans le domaine des rayons X. Les miroirs sont des multicouches, composés de couches minces d'épaisseur de l'ordre du nanomètre et placées de manière à former une superstructure. L'étude théorique de ces matériaux est effectuée à travers le calcul de leurs courbes de réflexion dans les domaines de faibles et grands angles d'incidence. Le modèle que nous avons utilisé est celui d'Abéles dans lequel une couche mince est représentée par une matrice carrée dont les éléments renferment les informations essentielles à partir desquelles le calcul effectué ; ses éléments sont l'épaisseur et l'indice de réfraction complexe de la couche mince.

Un programme informatique a été élaboré ; son objectif est la simulation des courbes de réflexion de ces superstructures et la recherche de pics de réflexion d'intensités appréciables.

Nous avons étudié quelques systèmes (multicouches) dans les domaines de faibles et grands incidence ; nous avons ensuite investigué les pics de réflexion et leurs paramètres de la multicouche qui permettent au système étudié d'avoir les meilleures qualités d'un miroir de Bragg dans le domaine des rayons X.

Nous avons étudiés un nombre important de systèmes multicouches ; nous citons entre autres : Fe/C, Si/C, Cu/Si,..... , et particulièrement les systèmes Al/Y et W/Si intercalés au Carbone. Une étude qualitative a été faite pour ces systèmes.

**Mots clés** : Multicouches, Courbes de réflexion, Rayons X, Simulation.

## Summary

We have used a theoretical study intended to predict the Bragg mirrors in the domain of x-rays. the mirrors are a multilayers , composed of thin layers of about the nanometres and placed so as to form a superstructure. The theoretical study of these materials is carried out through the calculation of their curves of reflection in the domain of small and great incidence angles. We used the Abéles model in which a thin layer is represented by a square matrix whose elements contain the essential information from which calculation carried out; its elements are the thickness and the complex index of refraction of the thin layer.

A data-processing program was elaborated; its objective is the simulation of the curves of reflection of these superstructures and to search the peaks of reflection of appreciable intensities.

We studied some systems (multilayer) in the domain of a small and great incidence; then we investigated the peaks of reflection and their parameters of multilayer which allow the system studied to have best qualities of a Bragg mirror in the domain of x-rays.

We studied a significant number of multi-layer systems; such as: Fe/C, Si/C, Cu/Si, ..... , and particularly the systems inserted Al/Y and W/Si with Carbon. A qualitative study was used to study these systems.

**Key words:** Multilayer, Curves of reflection, X-rays, Simulation.

## ملخص

لقد قمنا بدراسة نظرية من أجل الحصول على مرآة براغ في مجال الأشعة السينية . مرآة براغ عبارة عن متعدد الطبقات النانومترية ، تتكون من مجموعة من الطبقات الرقيقة النانومترية موضوعة بطريقة محددة لتشكل مرآة ذات قدرة انعكاس كبيرة. الدراسة النظرية تتمثل في دراسة أطياف الانعكاس ، و ذلك في مجال الزوايا الصغيرة و الزوايا الكبيرة للأشعة السينية الساقطة.

الدراسة تعتمد على طريقة إبيلاس ، أين كل طبقة رقيقة تمثل بمصفوفة تحتوي على جميع المعلومات الأساسية، من بين هذه المعلومات سمك الطبقة الرقيقة و الثوابت البصرية الخاصة بها.

الهدف من البرنامج الرقمي المدروس هو الحصول على أطياف الانعكاس ذات شدة مهمة لمتعدد الطبقات. قمنا بدراسة على عدد من متعدد الطبقات الرقيقة في مجال الزوايا الصغيرة و الكبيرة ، قمنا بتوظيف أطياف الانعكاس و المعلومات الخاصة بمتعدد الطبقات الرقيقة المدروس للحصول على مرآة براغ ذات جودة عالية في مجال الأشعة السينية.

من بين متعدد الطبقات المدروس: الحديد/كربون ، سيليسيوم/كربون ، نحاس/كربون.....

وبصفة خاصة متعدد الطبقات المنيوم/اتيريوم ، تانغستان/ سيليسيوم مضاف إليها طبقة كربون في الوسط ، دراسة معمقة أجريت على هاتين الحالتين.

الكلمات المفتاحية : متعدد الطبقات، أطياف الانعكاس ، الأشعة السينية ، الحساب الرقمي.

# TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION.....	1
-------------------	---

## CHAPITRE 1

### THEORIE ELECTROMAGNETIQUE

1.1. INTRODUCTION.....	3
1.2. CONSTANTE DIELECTRIQUE.....	5
1.3. THEORIE ELEMENTAIRE DE DISPERSION .....	7
1.3.1. DISPERSION DANS LES MILIEUX NON-CONDUCTEURS (MODELE DE LORENTZ) .....	7
1.3.2. DISPERSION DANS UN MATERIAU CONDUCTEUR (MODEL DE DRUDE).....	10
1.4. REFLEXION – REFRACTION .....	12
1.4.1. COEFFICIENTS DE REFLEXION ET DE REFRACTION.....	14
a) <i>Onde polarisée en mode (s)</i> .....	14
b) <i>Onde polarisée en mode (p)</i> .....	16
1.4.2. FACTEURS DE REFLEXION (R) ET DE TRANSMISSION (T) POUR L'ENERGIE.....	17

## CHAPITRE 2

### MODELISATION DES COUCHES MINCES

2.1. MODELISATION DES COUCHES MINCES .....	19
A) METHODE RECURSIVE (VECTORIELLE).....	19
B) METHODE DE FOURIER.....	21
C) METHODE MATRICIELLE.....	22
2.2. MODELISATION D'UNE MULTICOUCHE PAR LA METHODE MATRICIELLE....	23
2.2.1. REFLEXION ET TRANSMISSION D'UNE MONOCOUCHE .....	23
2.2.2. REFLEXION ET TRANSMISSION D'UNE PERIODE COMPOSEE DE DEUX COUCHES MINCES .....	26
2.2.3. REFLEXION ET TRANSMISSION D'UNE MULTICOUCHE.....	27

**CHAPITRE 3**  
**INDICE DE REFRACTION DANS LE DOMAINE DES RAYONS X**

<b>3.1 HISTORIQUE .....</b>	<b>31</b>
<b>3.2. DEFINITION.....</b>	<b>32</b>
<b>3.3. SOURCES DE RAYONS X.....</b>	<b>34</b>
3.3.1. TUBES A RAYONS X.....	34
3.3.2. SOURCES RADIOACTIVES.....	36
3.3.3. COMPARAISON DU SPECTRE CONTINU ET DU SPECTRE DE RAIES .....	36
<b>3.4 INDICE DE REFRACTION DANS LE DOMAINE DES RAYONS X .....</b>	<b>37</b>
3.4.1. DISPERSION ET INDICE DE REFRACTION.....	37
3.4.2. CONFRONTATION DES RESULTATS CALCULES OBTENUS PAR D'AUTRES MODELES .....	40
A) MODELE DE LORENTZ.....	40
B) MODÈLE DE KRAMERS-KALLMAN-MARK.....	42

**CHAPITRE 4**  
**RESULTATS ET DISCUSSION**

<b>4.1. REFLEXION D'UNE MONOCOUCHE .....</b>	<b>45</b>
4.2.1. EFFET DES EPAISSEURS DES COUCHES MINCES.....	48
4.2.2. EFFET DU NOMBRE DE PERIODES (N).....	49
4.2.3. EVOLUTION DES COURBES DE REFLEXION AVEC LA LONGUEUR D'ONDE DU RAYONNEMENT.....	51
4.2.4. <i>Effet d'une légère variation de la longueur d'onde sur le pic de réflexion</i> .....	54
<b>4.3. EFFET DE LA RUGOSITE SUR LE SPECTRE DE REFLEXION.....</b>	<b>56</b>
<b>4.4 SIMULATION DES COURBES DE REFLEXION DES MULTICOUCHES</b>	
<b>PRESENTANT UN INTERET DANS LE DOMAINE DES RAYONS X.....</b>	<b>58</b>
4.4.1. MULTICOUCHE PRESENTANT UN PIC DE REFLEXION AUX PETITS ET AUX GRANDS ANGLES .....	58
A) SYSTEME Ni/C.....	59
B) SYSTEME Pt/C.....	60
C) SYSTEME Cu/Si.....	61
D) SYSTEME Si/C.....	63
4.4.2. MULTICOUCHE PRESENTANT UN PIC DE REFLEXION AUX PETITS ANGLES.....	64
A) SYSTEME Mo/Si.....	64
B) SYSTEME Ta/Si.....	64
C) SYSTEME W/SiC.....	66
D) SYSTEME Ru/Si.....	66
E) SYSTEME Mo/B <sub>4</sub> C.....	67
F) AUTRES SYSTEMES.....	68

<b>4.5. EFFET D'UN REVETEMENT D'ALUMINIUM SUR LES CARACTERISTIQUES DU PIC DE REFLEXION, AUX GRANDS ANGLES.....</b>	<b>70</b>
A) SYSTEME W/Ti.....	70
B) SYSTEME W/CR.....	71
C) SYSTEME Ni/Ti.....	72
D) SYSTEME Fe /C.....	72
E) SYSTEME Co/C.....	74
<b>4.5 EFFETS DE L'EPaisseur D'UNE COUCHE D'ALUMINIUM SUR LES SPECTRES DE REFLEXION DES MULTICOUCHEs (Fe/C), (W/C) ET (W/SI), AUX PETITS ANGLES .....</b>	<b>76</b>
<b>4.6. EFFET DE L'INTERCALATION D'UNE COUCHE ULTRAMINCE DE CARBONE (C) SUR LES PROPRIETES DES MULTICOUCHEs (AL/Y) ET (W/SI).....</b>	<b>78</b>
A) MULTICOUCHE (AL/Y).....	78
B) MULTICOUCHE W/SI.....	79
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>81</b>
<b>ANNEX1.....</b>	<b>83</b>
<b>ANNEXE 2 .....</b>	<b>84</b>
<b>ANNEXE 3 .....</b>	<b>85</b>
<b>ANNEX4.....</b>	<b>88</b>
<b>ANNEX5.....</b>	<b>90</b>
<b>ORGANIGRAMME .....</b>	<b>90</b>
A)ORGANIGRAMME POUR UN MULTICOUCHE IDEAL : .....	90
B) ORGANIGRAMME POUR UNE MULTICOUCHE NON IDEALE : .....	91
<b>ANNEXE 6 .....</b>	<b>97</b>

## Liste des figures.

<b>Figure I-1:</b> Modèle de l'oscillateur unidimensionnel de Lorentz.....	7
<b>Figure I- 2:</b> Partie réelles ( $\epsilon_1$ ) et imaginaire ( $\epsilon_2$ ) de la constante diélectrique (a) et indices de réfraction (n) et indice d'extinction (k) (b) calculés à partir du modèle de Lorentz .....	9
<b>Figure I- 3:</b> Partie réelle ( $\epsilon_1$ ) et imaginaire ( $\epsilon_2$ ) de la constante diélectrique (a) et indices de réfraction (n) et indice d'extinction (k) (b) calculés à partir des relations du modèle de Drude .....	12
<b>Figure I- 4:</b> Réflexion et transmission à une interface. ....	13
<b>Figure I- 5:</b> Réflexion et transmission d'une onde électromagnétique en mode 'S' ... ..	15
<b>Figure I- 6:</b> Réflexion et transmission d'une onde électromagnétique en mode 'P' .....	16
<b>Figure II- 1:</b> Réflexion d'une onde éclairant une monocouche.....	19
<b>Figure II- 2:</b> Réflexion d'une onde par une multicouche .....	21
<b>Figure II- 3:</b> Schéma d'une monocouche. ....	24
<b>FigureII-4:</b> Schéma d'une période (bicouche) .....	27
<b>Figure II- 5:</b> Schéma d'une multicouche.....	30
<b>Figure III- 1:</b> Schéma illustrant l'effet photoélectrique. ....	33
<b>Figure III- 2 :</b> Spectres des rayons X de (Ag).....	35
<b>Figure III-3 :</b> Raies caractéristiques du (Mo).....	35
<b>Figure IV- 1:</b> Réflexion d'une couche de (C) en fonction de son épaisseur dans le domaine des angles rasants .....	46
<b>Figure IV-2:</b> Réflexion calculée d'une couche (W) en fonction de son épaisseur dans le domaine des angles rasants .....	47
<b>Figure IV-3:</b> Spectre de réflexion calculée avec une période (W/C) dans le domaine des angles rasants.....	48
<b>Figure IV-4:</b> Effet des épaisseurs $d_w$ et $d_c$ sur les spectres de réflexion calculées de W/C dans le domaine des angles rasants.....	49
<b>Figure IV-5:</b> Effet de nombre de périodes sur l'intensité du pic de réflexion (W/C) dans le domaine des angles rasants. ....	50
<b>Figure IV-6 :</b> Courbes de réflexion de W/C en fonction de ( $\lambda$ ) pour $N=35$ .....	52
<b>Figure IV-7 :</b> Courbes de réflexion de W/Si en fonction de ( $\lambda$ ) pour $N=37$ .....	53
<b>Figure IV-8:</b> Courbe de réflexion de (W/C) calculées pour $\lambda = (1.54 \pm \Delta\lambda) A^\circ$ , $\Delta\lambda = 0.2 A^\circ, 0.4 A^\circ, 0.6 A^\circ$ .....	54
<b>Figure IV-9:</b> Variation de l'intensité du pic de réflexion de (W/C) pour $\lambda = (1.54 \pm \Delta\lambda) A^\circ$ , $\Delta\lambda = 0.2 A^\circ, 0.4 A^\circ, 0.6 A^\circ$ .....	55
<b>Figure IV-10:</b> Variation de la position du pic de W/C avec $\lambda=(1.54 \pm \Delta\lambda) A^\circ$ , $\Delta\lambda = 0.2 A^\circ, 0.4 A^\circ, 0.6 A^\circ$ .....	55
<b>Figure IV-11:</b> Effet de la rugosité sur les courbes calculées de la réflexion de (W/C).....	57
<b>Figure IV-12:</b> Effet de la rugosité sur les courbes calculées de la réflexion de (W/Si).....	57
<b>Figure IV-13:</b> Courbes de réflexion calculées de Ni/C dans le domaine des angles rasants.....	59
<b>Figure IV-14:</b> Courbes de réflexion calculées de Ni/C dans le domaine des grandes angles	60
<b>Figure IV-15:</b> Courbes de réflexion calculées de Pt/C dans le domaine des angles rasants	61
<b>Figure IV-16:</b> Courbes de réflexion calculées de Pt/C dans le domaine des grands angles	61

<b>Figure IV-17:</b> Courbes de réflexion calculées de Cu/Si dans le domaine des angles rasants	62
<b>Figure IV- 18:</b> Courbes de réflexion calculées de Cu/Si dans le domaine des grands angles	62
<b>Figure IV-19:</b> Courbes de réflexion calculées de Si/C dans le domaine des angles rasants	63
<b>Figure IV-20:</b> Courbes de réflexion calculées de Si/C dans le domaine des grands angles	64
<b>Figure IV- 21:</b> Courbe de réflexion calculée de Mo/Si dans le domaine des angles rasants	65
<b>Figure IV- 22:</b> Courbe de réflexion calculée de Ta/Si dans le domaine des angles rasants	65
<b>Figure IV- 23 :</b> Courbes de réflexion calculées de W/SiC dans le domaine des angles rasants.....	66
<b>Figure IV- 24 :</b> Courbes de réflexion calculées de Ru/Si dans le domaine des grands angles .....	67
<b>Figure IV- 25 :</b> Courbe de réflexion calculée de (Mo/B <sub>4</sub> C) dans le domaine des angles rasants.....	68
<b>Figure IV- 26 :</b> Courbes de réflexion calculées de (W/Ti) et de Al/(W/Ti) .....	71
<b>Figure IV- 27 :</b> Courbes de réflexion calculées de (W/Cr) et de Al/(W/Cr) . .....	72
<b>Figure IV- 28 :</b> Courbes de réflexion calculées de (Ni/Ti) et de Al/(Ni/Ti).....	73
<b>Figure IV- 29 :</b> Courbes de réflexion calculées de (Fe/C) et de Al/(Fe/C).....	73
<b>Figure IV- 30 :</b> Courbes de réflexion calculées de (Co/C) et de Al/(Co/C).....	74
<b>Figure IV- 31 :</b> Courbes de réflexion calculées (Fe/C) et de Al/(Fe/C).....	77
<b>Figure IV- 32 :</b> Courbes de réflexion calculées de (W/C) en fonction de l'épaisseur de la couche d'Aluminime en surface.....	77
<b>Figure IV- 33 :</b> Courbes de réflexion calculées de (W/Si) en fonction de l'épaisseur de la couche d'Aluminime en surface.....	77
<b>Figure IV- 34 :</b> Courbes de réflexion calculées de (Al/Y) et (Al/C/Y/C) .....	79
<b>Figure IV- 35 :</b> Courbes de réflexion calculées de (W/Si) et (W/C/Si/C) .....	80

## Liste des tableaux.

<b>Tableau III- 1:</b> Valeurs de $\delta$ et $\beta$ comparées aux valeurs expérimentales, pour $\lambda=1.54 \text{ \AA}^\circ$ .....	39
<b>Tableau III-2:</b> Valeurs de $\delta$ et $\beta$ calculées à partir des modèles théoriques pour $\lambda=1.54 \text{ \AA}^\circ$ .....	44
<b>Tableau IV-1:</b> Intensités relatives du pic de réflexion, en fonction du nombre de périodes. ...	50
<b>Tableau IV-2:</b> Intensités et positions du pic de réflexion de W/C en fonction de ( $\lambda$ ). .....	51
<b>Tableau IV-3:</b> Intensités et positions du premier pic de réflexion de W/Si pour différentes valeurs de ( $\lambda$ ).....	53
<b>Tableau IV-4 :</b> Intensité du pic de réflexion dans W/C et W/Si en fonction de ( $\sigma$ ).....	57
<b>Tableau IV-5 :</b> Longueurs d'onde des raies caractéristiques de quelques matériaux.....	58
<b>Tableau IV-6 :</b> Epaisseurs de couches, nombre de périodes, intensité et position des pics de réflexion, de différents matériaux. ( $\lambda=1.45 \text{ \AA}^\circ$ ).	69
<b>Tableau IV-7 :</b> Intensité et position des pics de réflexion pour les multicouches, avec et sans (Al).. .....	75

## Introduction

**L**es nano objets ont des propriétés qui dépendent fortement de leur structure cristalline, de leur taille ou encore de leur forme. Pour tirer profit de leurs propriétés originales, il est nécessaire de réaliser un nombre suffisant d'objets identiques. Toutefois les processus aléatoires qui gouvernent la croissance des nano structures conduisent généralement à une large dispersion de leurs tailles et de leurs formes. Aussi il est important de savoir les caractériser pour pouvoir les contrôler. La réflexion des rayons X en incidence rasante permet d'accéder à une information globale et quantitative des paramètres structuraux et morphologiques du dépôt sur l'ensemble de l'échantillon. La réflectivité X en incidence rasante est utilisée pour mesurer l'épaisseur et la rugosité de films minces. Au cours des dernières années, un intérêt considérable s'est développé pour la fabrication des miroirs multicouches. Ces miroirs: utilisant le principe d'interférence, pourraient servir pour diverses applications: micro lithographie, astronomie, laser à rayons X...etc. Les multicouches sont élaborées en déposant alternativement deux matériaux avec des constantes optiques aussi différentes que possible. Étant donné que tous les matériaux dans ce domaine d'énergie sont plus ou moins absorbants, il est important de choisir les combinaisons de matériaux faiblement absorbants pour former la période de l'empilement. De plus, ces matériaux doivent remplir la condition de former des interfaces abruptes et planes durant une expérience de dépôt de multicouches.

Le premier chapitre est un bref résumé de la théorie de l'électromagnétisme. Il traite la théorie générale de l'électromagnétisme régie par les équations de Maxwell ainsi que la théorie de dispersion dans les milieux non-conducteurs (Modèle de Lorentz) et dans les milieux conducteurs (Modèle de Drude). Il contient aussi une partie sur le calcul des coefficients de Fresnel en amplitude et en énergie pour les deux modes de polarisation (s et p) de la lumière incidente.

Le deuxième chapitre présente les différents modèles conçus pour la description de systèmes de couches minces et des multicouches. Le développement des expressions de la réflexion (R) et de la transmission (T), par les différents modèles, est donné. Les coefficients (R) et (T) sont développés

par la méthode matricielle ; ils sont exprimés pour une couche unique et pour le cas d'une multicouche.

Le troisième chapitre est consacré au développement des expressions des coefficients de réfraction ( $1-\epsilon$ ) et d'absorption ( $\beta$ ) d'un matériau dans le domaine des rayons X. Au début, on trouve un bref historique sur les rayons x et leur production ; ensuite sont présentés les modèles de Lorentz et de Kramers-Kallman-Mark qui fournissent les expressions de ces deux grandeurs. Des valeurs calculées par les deux modèles sont présentées et comparées.

Le quatrième chapitre contient les différents résultats des calculs effectués par le programme élaboré pour la simulation des courbes de réflexion des systèmes formés de couche unique et de multicouches. Les effets des différents paramètres caractérisant la multicouche sur les courbes de réflexion sont expliqués. Ensuite, un nombre de systèmes présentant un intérêt dans la pratique ont été étudiés ; les résultats sont présentés, commentés et interprétés. L'effet de l'intercalation d'une couche mince d'aluminium sur les propriétés de certaines multicouches a aussi été étudié ; une comparaison des courbes de réflexion des multicouches intercalées et non intercalées est faite.

# Chapitre 1

## Théorie électromagnétique

### 1.1. Introduction

Dans le vide, une onde électromagnétique est représentée par deux champs : le champ électrique  $\vec{E}$ , dont l'unité est le Volt par mètre [V/m], et le champ magnétique  $\vec{H}$ , exprimé en Ampère par mètre [A/m]. Ces deux champs ne sont pas indépendants ; leurs relations font intervenir les caractéristiques du milieu de propagation de l'onde. La direction du champ électrique désigne la direction de polarisation de l'onde.

Soit :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \chi \cdot \vec{E} \quad (\text{I-1})$$

où  $\varepsilon_0 \approx 8.85 \cdot 10^{-12} \text{ F} \cdot \text{m}^{-1}$ , représente la permittivité électrique du vide. L'unité associée à  $\vec{P}$  est le Coulomb par mètre carré [ $\text{C} \cdot \text{m}^{-2}$ ]. Le coefficient  $\chi$ , sans dimension est appelé susceptibilité électrique linéaire. Pour rendre compte à la fois du champ électrique excitateur et de la polarisation induite dans la matière, il est nécessaire d'introduire une nouvelle entité : c'est le vecteur de déplacement électrique  $\vec{D}$ , défini comme :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot \vec{E} + \vec{P} \quad (\text{I-2})$$

L'unité associée à  $\vec{D}$  est naturellement la même que celle de la polarisation [ $\text{C}/\text{m}^2$ ].

La combinaison des équations (I-1) et (I-2) donne :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot (1 + \chi) \cdot \vec{E} = \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r \cdot \vec{E} \quad (\text{I-3})$$

Le coefficient  $\varepsilon_r = (1 + \chi)$  se nomme permittivité diélectrique relative. Comme  $\chi$  est sans dimension il en est alors de même pour  $\varepsilon_r$ . En suivant la même approche, et bien que le milieu soit non magnétique, il est utile d'introduire le vecteur induction magnétique d'expression :

$$\vec{B} = \mu_0 \cdot \vec{H} \quad (\text{I-4})$$

$\mu_0$  : susceptibilité magnétique du vide.

Les évolutions spatiale et temporelle des ondes électromagnétiques sont décrites par les équations de Maxwell. Dans le cas des diélectriques [1], elles s'écrivent:

$$\left\{ \begin{array}{ll} \nabla \cdot \vec{E} = \rho & \text{Loi de Coulomb} \\ \nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} & \text{Loi de Faraday} \\ \nabla \cdot \vec{B} = 0 & \text{Conservation du champ magnétique} \\ \nabla \times \vec{H} = \mu_0 \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} & \text{Loi d'Amper} \end{array} \right. \quad (\text{I-5})$$

La combinaison des équations de Maxwell et des équations (I-3) et (I-4) donne l'équation de propagation du champ électrique:

$$\nabla \times (\nabla \times (\vec{E})) + \mu_0 \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \vec{0} \quad (\text{I-6})$$

La solution de l'équation (I-6) est une onde plane progressive monochromatique.

## 1.2. Constante diélectrique

Lorsqu'une onde électromagnétique éclaire un matériau métallique, elle induit des effets de polarisation et des déplacements des électrons. Ces processus constituent la réponse optique du matériau et peuvent être caractérisés par la fonction diélectrique ( $\epsilon$ ). L'interaction de la lumière avec la matière isotrope induit un moment dipolaire sur les molécules du matériau appelé polarisation, oscillant à la même fréquence que l'onde électromagnétique incidente. Un dipôle qui oscille devient lui-même une source de champ électromagnétique. A cause de cette polarisation induite, l'amplitude du champ lumineux incident diminue ; cependant, cette perte est compensée par le champ électromagnétique généré par la polarisation oscillante. On peut voir la propagation d'une onde lumineuse dans un milieu dispersif [2] (c'est-à-dire avec  $n = f(\omega)$ ).

On sait que :

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) = \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \vec{\nabla}^2 \vec{E} \quad (\text{I-7})$$

En appliquant à (I-6), on obtient :

$$\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \vec{\nabla}^2 \vec{E} = -\frac{\epsilon \cdot \mu}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \frac{4 \cdot \pi \cdot \sigma \cdot \mu}{c^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{I-8})$$

on a ainsi :  $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 \quad (\text{I-9})$

donc :  $\vec{\nabla}^2 \vec{E} = -\frac{\epsilon \cdot \mu}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \frac{4 \cdot \pi \cdot \sigma \cdot \mu}{c^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{I-10})$

La propagation de l'onde monochromatique dans la matière isotrope oblige que le vecteur d'onde est complexe pour décrire l'atténuation de l'énergie de l'onde ; l'expression du champ, solution de (I-6) est donc :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \cdot \exp i(\vec{q} \cdot \vec{r} - \omega \cdot t) \quad (\text{I-11})$$

Les équations (I-10) et (I-11) donnent :

$$q^2 = \mu \frac{\omega^2}{c^2} \left( \varepsilon + i \frac{4\pi\sigma}{\omega} \right) \quad (\text{I-12})$$

On sait que :  $q = \left( \frac{\omega}{c} \right) \tilde{n} = \frac{\omega}{c} (n + i.k)$  (I-13)

En comparant les équations (I-12) et (I-13), on tire :

$$\varepsilon = \frac{n^2 - k^2}{\mu} \quad (\text{I-14})$$

et par conséquent on tire aussi :  $\frac{4\pi\sigma}{\omega} = \frac{2.n.k}{\mu}$

La fonction diélectrique complexe  $\tilde{\varepsilon}$  s'écrit comme :

$$\tilde{\varepsilon} = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 = \frac{\tilde{n}^2}{\mu} \quad (\text{I-15})$$

soit :

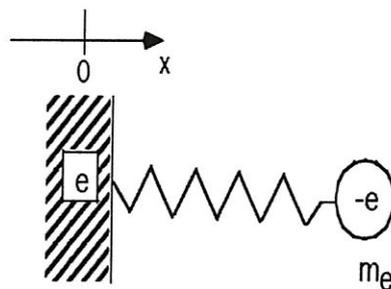
$$\begin{aligned} \varepsilon_1 &= \frac{n^2 - k^2}{\mu} \\ \varepsilon_2 &= \frac{2.n.k}{\mu} \end{aligned} \quad (\text{I-16})$$

### 1.3. Théorie élémentaire de dispersion

Lorsqu'une onde électromagnétique se propage dans un milieu, elle interagit avec ses particules chargées ; les charges sont accélérées par les forces des champs électrique et magnétique du rayonnement. Comme le rayonnement est un champ électromagnétique oscillant, le mouvement des charges sera également oscillatoire ; ainsi, les particules chargées deviennent les sources d'un rayonnement électromagnétique secondaire. Le champ total à l'intérieur du matériau est dû à la superposition de l'onde source et des ondes émises par les charges. L'effet de la somme de toutes les contributions microscopiques est observé à travers un ensemble de paramètres macroscopiques tels que l'indice de réfraction ( $n$ ) et l'indice d'extinction ( $k$ ).

#### 1.3.1. Dispersion dans les milieux non-conducteurs (modèle de Lorentz)

Dans un premier temps, on s'intéressera au matériau isolant sans charges libres. L'application d'un champ électrique à un tel milieu aura pour conséquence un déplacement des charges liées (charges de polarisation). Le champ électrique associé à la lumière exerce une force sur les charges du matériau et cette interaction peut être décrite par le modèle classique de Lorentz [3-5], qui considère le matériau comme un ensemble d'oscillateurs à une dimension (figure I-1) :



*Figure I-1: Modèle de l'oscillateur unidimensionnel de Lorentz*

L'équation qui régit le mouvement d'un oscillateur s'écrit :

$$m \cdot \ddot{\vec{r}} = -m \cdot \gamma \cdot \dot{\vec{r}} - k \cdot \vec{r} + \vec{f} \quad (\text{I-17})$$

L'électron est retenu autour de sa position d'équilibre par une force de rappel harmonique ( $-k \vec{r}$ ); le terme ( $m \gamma \dot{\vec{r}}$ ) rend compte des effets dissipatifs,  $m$  est la masse de l'électron et  $\vec{f}$  est la force de Lorentz exercée par le champ électromagnétique appliqué :

$$\vec{f} = -e(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}) \approx -e\vec{E} \quad (\text{I-18})$$

La force due au champ magnétique est négligeable devant celle due au champ électrique, et la vitesse de l'électron  $v$  est nettement inférieure à celle de la lumière.

La polarisation du milieu est donnée par la somme de tous les moments dipolaires élémentaires :

$$\vec{p} = -N \cdot e \cdot \vec{r} \quad (\text{I-19})$$

où  $N$  est le nombre de dipôles élémentaires par unité de volume.

La combinaison de (I-17) et de (I-18) donne :

$$\ddot{\vec{p}} + \gamma \cdot \dot{\vec{p}} + \omega_0^2 \cdot \vec{p} = \frac{Ne^2}{m} \cdot \vec{E} \quad (\text{I-20})$$

L'équation (I-20) est celle d'un oscillateur harmonique amorti en régime forcé, sa fréquence de résonance  $\omega_0$  est donnée par :

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}} \quad (\text{I-21})$$

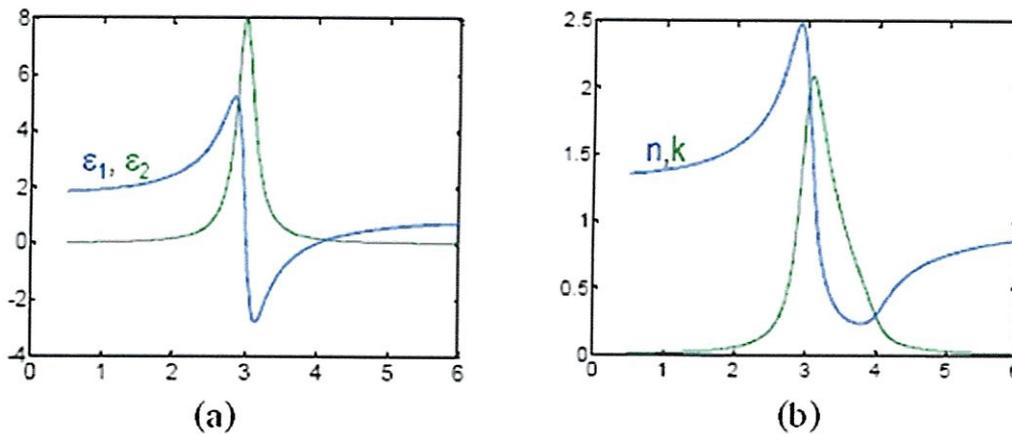
L'oscillateur est soumis à un champ électrique extérieur q'on peut décomposer en ondes

harmoniques de type  $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i\omega t}$ . La permittivité diélectrique complexe de l'oscillateur dans ce cas est :

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon_0 \left( 1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \left( \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \right) \right) \quad (I-22)$$

- $\gamma$  : terme d'amortissement.
- $\omega_0$  : fréquence propre des électrons.
- $N$  : nombre total d'électrons par unité de volume.

L'équation (I-22) représente la permittivité d'un matériau non-conducteur. On peut alors calculer la variation de l'indice de réfraction  $n$  et de l'indice d'extinction  $k$  en fonction de la fréquence et définir les zones de transparence, de transmittance et d'absorbance du matériau (figure 2).



**Figure I-2:** Parties réelle ( $\epsilon_1$ ) et imaginaire ( $\epsilon_2$ ) de la constante diélectrique (a) et indices de réfraction ( $n$ ) et indice d'extinction ( $k$ ) (b) calculés à partir du modèle de Lorentz ( $\gamma = 1.388, \omega_0 = 15.77 \text{ eV}$ )

### 1.3.2. Dispersion dans un matériau conducteur (model de Drude)

Les matériaux conducteurs (métaux) possèdent des électrons libres (états délocalisés) et même en présence des électrons liés leur contribution est largement prédominante ; cette réalité est observée à travers l'étude des propriétés optiques des métaux. Ce modèle de conduction électronique développé par Drude, permet de prédire qualitativement le comportement des électrons dans un métal .Fondé sur la théorie cinétique des gaz, il suppose que lorsqu'on assemble plusieurs atomes d'un élément métallique pour former le métal massif, les électrons de valence ne sont plus liés aux ions et forment ainsi un "gaz" d'électrons ( $e^-$  de conduction) .

Quand aux ions, ils constituent la charge positive compensatrice qui assure la neutralité du système et sont considérés comme immobiles.

Les électrons libres sont accélérés par un champ électromagnétique et sont freinés par un frottement fluide ; par contre, ils ne sont soumis à aucune force de rappel [5-7]. L'équation (I-17) devient dans ces conditions :

$$m \ddot{\vec{r}} = -m \gamma \dot{\vec{r}} - e \vec{E} \quad (\text{I-23})$$

Pour les électrons libres, le vecteur densité de courant électrique s'écrit :

$$\vec{j} = -N e \vec{v} = -N e \dot{\vec{r}} \quad (\text{I-24})$$

$N$  est le nombre d'électrons par unité de volume.

Les équations (I-23) et (I-24) donnent l'équation (I-25) :

$$\frac{d\vec{j}}{dt} + \gamma \vec{j} = \left( \frac{N e^2}{m} \right) \vec{E} \quad (\text{I-25})$$

La solution de (25) pour les ondes harmoniques  $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i\omega t}$ , est la suivante :

$$\vec{j} = \left( \frac{Ne^2}{\gamma + i\omega} \right) \vec{E} \quad (\text{I-26})$$

Sachant que  $\vec{j} = \tilde{\sigma} \vec{E}$ , on obtient alors la conductivité électrique complexe  $\tilde{\sigma}$  :

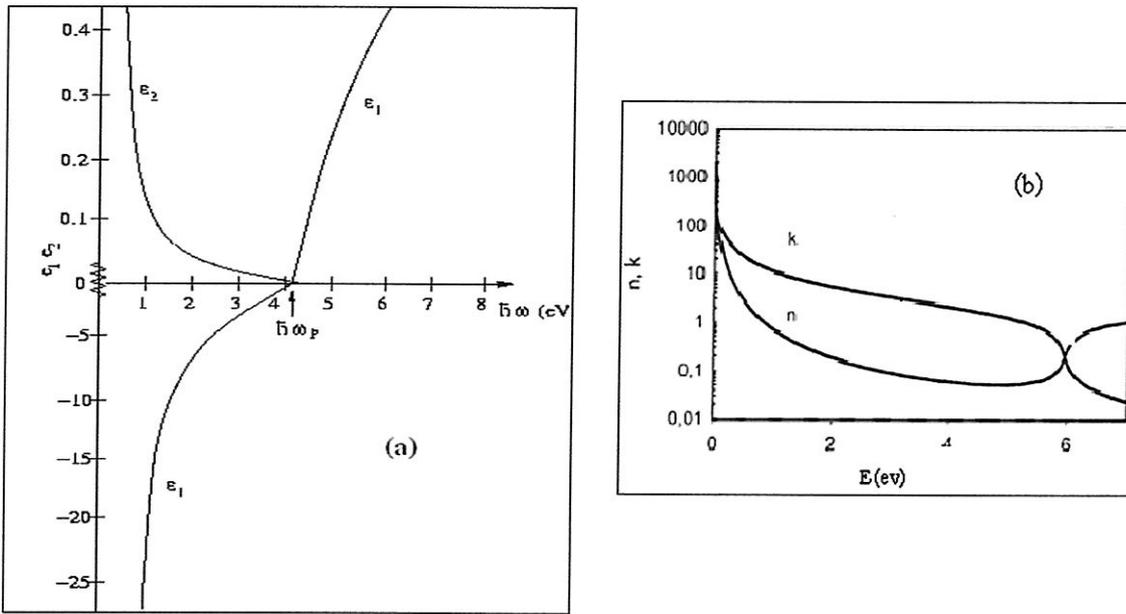
$$\tilde{\sigma} = \frac{Ne^2/m}{\gamma + i\omega} = \frac{\sigma_0}{1 + i\omega/\gamma} \quad (\text{I-27})$$

$$\text{ou } \sigma_0 = \frac{Ne^2}{m\gamma}$$

Connaissant la relation entre la permittivité ( $\tilde{\epsilon}$ ) et la conductivité ( $\tilde{\sigma}$ ) soit :  $\tilde{\epsilon} = \epsilon_0 - i\tilde{\sigma}/\omega$ , on obtient pour les électrons libres:

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon_0 \left( 1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \frac{1}{i\omega\gamma - \omega^2} \right) = \epsilon_0 \left( 1 + \frac{\omega_p^2}{i\omega\gamma - \omega^2} \right) \quad (\text{I-28})$$

$\omega_p$  est la fréquence associée aux oscillations collectives du gaz d'électrons libres ; sa connaissance est nécessaire pour la caractérisation des conducteurs (figure I-3).



**Figure I-3 :** Partie réelle ( $\epsilon_1$ ) et imaginaire ( $\epsilon_2$ ) de la constante diélectrique (a) et indices de réfraction ( $n$ ) et indice d'extinction ( $k$ ) (b) calculés à partir du modèle de Drude ( $\hbar\gamma = 0.02$  eV,  $\omega_p^2 = 30$  eV<sup>2</sup>)

-Le terme d'amortissement  $\gamma = 1/\tau$  ( $\tau$  : le temps de relaxation des électrons de conduction).

- $\omega_p$  : fréquence de plasma, avec  $\omega_p^2 = \frac{4\pi Ne^2}{m^*}$  ( $m^*$  : la masse effective des électrons).

### 1.4. Réflexion – Réfraction

Soit une onde électromagnétique plane arrivant sur une interface séparant deux milieux transparents linéaires, homogènes et isotropes d'indices de réfraction différents (figure I-4).

Les équations de propagation de l'onde électromagnétique dans chaque milieu et les conditions de continuité des champs électrique et magnétique au niveau de la surface de séparation sont traduites par les équations de dispersion reliant le vecteur d'onde ( $k$ ) et la pulsation ( $\omega$ ) dans chaque milieu [8-9] :

$$k_1^2 = n_1^2 \frac{\omega^2}{c^2}, \quad k_2^2 = n_2^2 \frac{\omega^2}{c^2} \tag{I-30}$$

Les équations de Maxwell assurent la continuité du champ électromagnétique au niveau de la surface de séparation supposée parfaitement plane. L'onde incidente (milieu **M1**) génère dans le milieu (**M2**) une onde réfractée et dans le milieu (**M1**) une onde réfléchie.

Les trois ondes sont planes, d'équations :

$$\begin{aligned}
 \vec{E}_i &= \vec{E}_{0i} \exp i(\vec{k}_i \cdot \vec{r} - \omega.t) && \text{onde incidente} \\
 \vec{E}_r &= \vec{E}_{0r} \exp i(\vec{k}_r \cdot \vec{r} - \omega.t) && \text{onde réfléchie} \\
 \vec{E}_t &= \vec{E}_{0t} \exp i(\vec{k}_t \cdot \vec{r} - \omega.t) && \text{onde transmise}
 \end{aligned}
 \tag{I-31}$$

Les conditions de continuité du champ électromagnétique à la surface de séparation se traduisent par les équations suivantes :

$$\begin{aligned}
 E_i \exp(-i\vec{k}_i \cdot \vec{r}) + E_r \exp(-i\vec{k}_r \cdot \vec{r}) &= E_t \exp(-i\vec{k}_t \cdot \vec{r}) \\
 E_i + E_r \exp[-i(\vec{k}_r - \vec{k}_i) \cdot \vec{r}] &= E_t \exp[-i(\vec{k}_t - \vec{k}_i) \cdot \vec{r}]
 \end{aligned}
 \tag{I-32}$$

Si l'indice  $n_1$  (milieu **M1**) est supérieur à l'indice  $n_2$  (milieu **M2**), l'angle de réfraction ne peut pas toujours être calculé. Si l'angle d'incidence est supérieur à un angle limite  $i_1 = n_2/n_1$ , l'onde réfractée ne pénètre pas dans le milieu **M2**, c'est le cas de la réflexion totale.

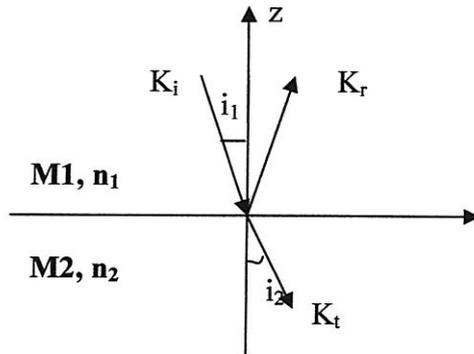


Figure I-4 : Réflexion et transmission à une interface

$i_1$  : angle d'incidence.  $i_2$  : angle de réfraction

$-k_i, k_r, k_t$ : vecteurs des ondes incidente, réfléchi et transmis respectivement.

### 1.4.1. Coefficients de réflexion et de réfraction

Les coefficients de réflexion et de réfraction expriment respectivement le rapport entre les amplitudes des ondes réfléchi et transmise à l'amplitude de l'onde incidente ; leurs expressions en lumière polarisée, loin de la réflexion totale, seront données dans ce qui suit.

#### a) Onde polarisée en mode (s)

Dans ce cas, le champ électrique de l'onde incidente est perpendiculaire au plan d'incidence (figure I-5). L'onde incidente étant donnée par [10]:

$$\vec{E}_i = E_{0i} \exp[i(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})] \vec{u}_y \quad (\text{I-33})$$

Les ondes réfléchi  $\vec{E}_r$  et transmise  $\vec{E}_t$  s'écrivent :

$$\begin{aligned} \vec{E}_r &= E_{0r} \exp[i(\omega t - \vec{k}_r \cdot \vec{r})] \vec{u}_y \\ \vec{E}_t &= E_{0t} \exp[i(\omega t - \vec{k}_t \cdot \vec{r})] \vec{u}_y \end{aligned} \quad (\text{I-34})$$

$E_{0i}$ ,  $E_{0r}$ ,  $E_{0t}$  sont les amplitudes des ondes incidente, réfléchi et transmise respectivement.

Les coefficients de réflexion  $r_s$  et de transmission  $t_s$  sont définis à partir des deux équations suivantes :

$$E_{0r} = r_s \cdot E_{0i} \quad \text{et} \quad E_{0t} = t_s \cdot E_{0i}$$

L'indice « s » indique que ces coefficients sont calculés pour une polarisation perpendiculaire au plan d'incidence (figure I-5). Les conditions de continuité des composantes tangentielles des champs  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  s'écrivent :

$$E_{iy} + E_{ry} = E_{ty} \quad \text{et} \quad H_{ix} + H_{rx} = H_{tx} \quad (\text{I-35})$$

On peut les mettre également sous la forme :

$$\begin{aligned}
 1 + r_s &= t_s \\
 (1 - r_s) \cdot n_1 \cos i_1 &= t_s \cdot n_2 \cos i_2
 \end{aligned}
 \tag{I-36}$$

On détermine enfin, les expressions de  $r_s$  et de  $r_t$ , appelés coefficients ou formules de Fresnel :

$$r_s = \frac{n_1 \cos i_1 - n_2 \cos i_2}{n_1 \cos i_1 + n_2 \cos i_2}
 \tag{I-37}$$

$$t_s = \frac{2n_1 \cos i_1}{n_1 \cos i_1 + n_2 \cos i_2}
 \tag{I38}$$

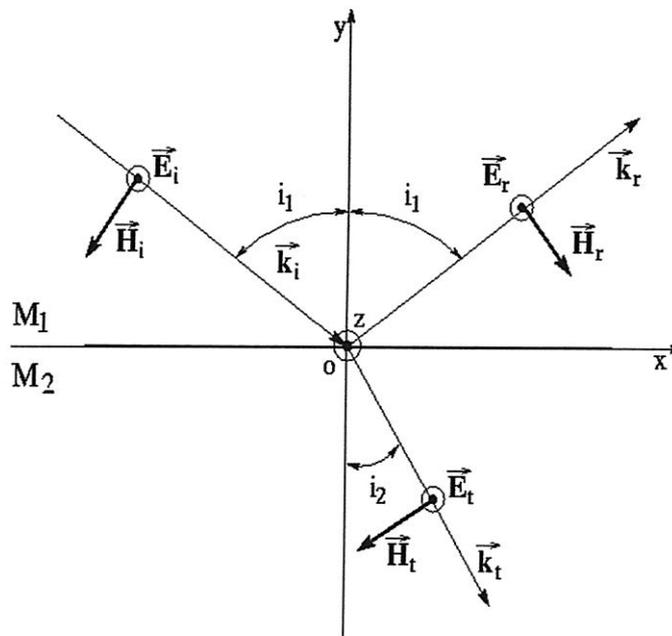


Figure I-5 : Réflexion et transmission d'une onde électromagnétique en mode 'S'

**b) Onde polarisée en mode (p)**

Dans ce cas, le champ électrique de l'onde incidente est parallèle au plan d'incidence. La direction et le sens positif des champs sont représentés sur la figure I-6. Les équations de continuité pour ce cas, sont [11]:

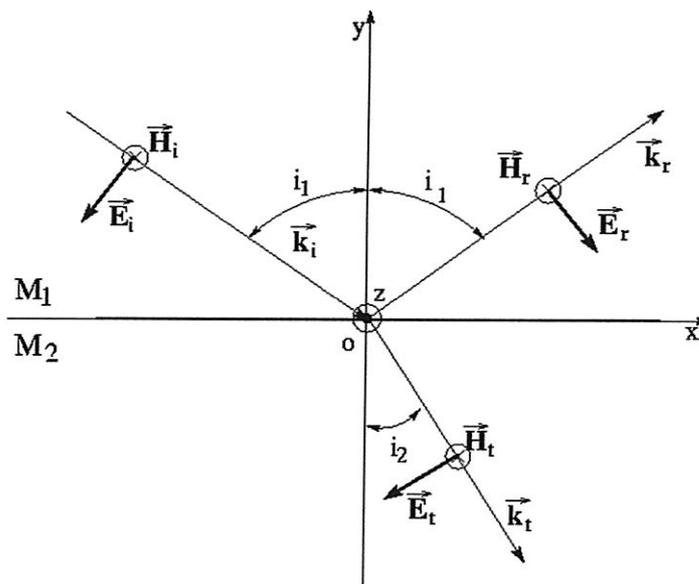
$$(1 + r_p) \cos i_1 = t_p \cos i_2 \tag{I-40}$$

$$(1 - r_p) n_1 = t_p n_2 \tag{I-41}$$

D'où :

$$r_p = \frac{n_1 \cos i_2 - n_2 \cos i_1}{n_1 \cos i_2 + n_2 \cos i_1} \tag{I-42}$$

$$t_p = \frac{2n_1 \cos i_1}{n_1 \cos i_2 + n_2 \cos i_1} \tag{I-43}$$



**Figure I-6 : Réflexion et transmission d'une onde électromagnétique en mode 'P'**

### 1.4.2. Facteurs de réflexion (R) et de transmission (T) pour l'énergie

La conservation de l'énergie transportée par une onde électromagnétique au passage d'une surface de séparation entre deux milieux parfaitement transparents exige la conservation du flux lumineux [12]. Les facteurs de réflexion (R) et de transmission (T) pour l'énergie de la surface de séparation sont définis comme suit :

$$R = \frac{E_r^2}{E_i^2} \quad (\text{I-44})$$

$$T = \frac{n_2 \cos i_2}{n_1 \cos i_1} \frac{E_t^2}{E_i^2} \quad (\text{I-45})$$

La conservation du flux lumineux exige d'écrire :

$$R + T = 1$$

Pour la polarisation 's', le pouvoir de réflexion peut être exprimé à partir de (I-44) soit :

$$R_s = \frac{E_{rs}^2}{E_{is}^2} r_s^2 \quad (\text{I-46})$$

Le facteur de transmission quant à lui, il peut être exprimé à partir de (I-45) :

$$T_s = \frac{n_2 \cos i_2}{n_1 \cos i_1} \frac{E_{ts}^2}{E_{is}^2} = \frac{n_2 \cos i_2}{n_1 \cos i_1} t_s^2 \quad (\text{I-47})$$

De la même manière nous obtenons pour la polarisation 'p' :

$$\begin{cases} R_p = r_p^2 \\ T_p = 1 - R_p \end{cases} \quad (\text{I-48})$$

Le pouvoir réflecteur total (R) s'exprime aussi en fonction de  $R_s$  et de  $R_p$  à partir de l'équation :

$$R = \frac{E_{rs}^2 + E_{rp}^2}{E_{is}^2 + E_{ip}^2} \quad (\text{I-49})$$

Si  $\alpha_i$  est l'angle que fait le champ électrique incident  $\vec{E}_i$  avec le plan d'incidence, R s'écrit alors :

$$R = \sin^2 \alpha_i R_s + \cos^2 \alpha_i R_p \quad (\text{I-50})$$

# Chapitre 2

## Modélisation des couches minces

### 2.1. Modélisation des couches minces

#### a) Méthode récursive (vectorielle)

La théorie de l'optique des couches minces permet d'accéder à l'expression de la réflectivité en amplitude pour le cas d'une couche mince ( $\tilde{n}_1$ ) déposée sur un substrat ( $\tilde{n}_2$ ) et immergé dans un environnement d'indice ( $n_0$ ), lorsque les interfaces sont parfaitement planes (couche idéale) [13,14] (figure II-1) ; elle est donnée par :

$$r = \frac{r_{01} + r_{12}e^{2i\varphi}}{1 + r_{01}r_{12}e^{2i\varphi}} \quad (\text{II-1})$$

$r_{01}$  : Coefficient de réflexion à l'interface supérieure.

$r_{12}$  : Coefficient de réflexion à l'interface inférieure.

$\varphi$  : Déphasage entre deux rayons consécutifs.

avec 
$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_1 d \cos \theta_1 \quad (\text{II-2})$$

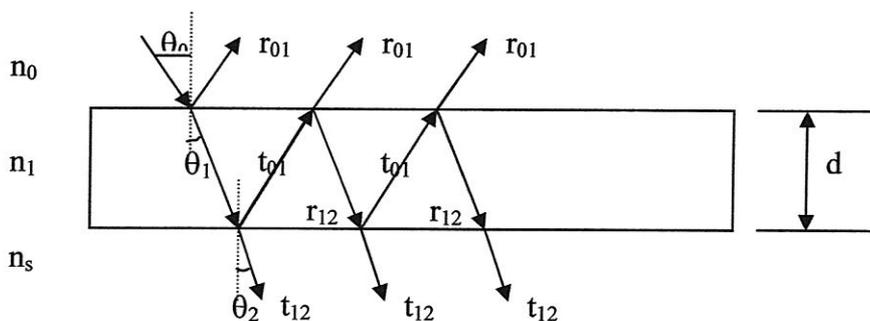


Figure II- 1: Réflexion d'une onde éclairant une monocouche

$d$  est l'épaisseur de la couche et  $\theta$  l'angle d'incidence calculé à partir de la loi Snell-Descartes ( $n_0 \sin \theta = n_i \sin \theta_i$ ).

Puisque cette méthode inclut l'influence de l'absorption au moyen de la partie complexe de  $\tilde{n}$  (l'indice de réfraction), elle donne alors la solution exacte pour la réflectivité aux interfaces des couches minces qui constituent la structure multicouche. Donc pour une structure multicouche l'usage répétitif de la relation (II-1) permet de calculer la réflectivité. Connaissant les coefficients de Fresnel  $r_{12}$ ,  $r_{21}$ ,  $r_{23}$ ,  $r_{03}$  des différentes interfaces, on applique à la première interface (couche/substrat) la relation suivante :

$$r_x = \frac{r_{12} + r_{13}e^{2i\varphi}}{1 + r_{21}r_{13}e^{2i\varphi}} \quad (\text{II-3})$$

De cette façon, la première couche est remplacée par une surface fictive dont le coefficient est  $r_x$ , la même procédure est appliquée à la deuxième interface (couche/surface fictive), ce qui conduit à la valeur du coefficient de réflexion suivant :

$$r_x = \frac{r_{12} + r_x e^{2i\varphi}}{1 + r_{12} r_x e^{2i\varphi}} \quad (\text{II-4})$$

Le coefficient de réflexion de l'ensemble croit alors avec le nombre de couches, la procédure est répétée jusqu'à ce que toutes les couches soient éliminées ; pour la dernière couche, le coefficient s'écrit :

$$r_x = \frac{r_{02} + r_x e^{2i\varphi}}{1 + r_{02} r_x e^{2i\varphi}} \quad (\text{II-5})$$

La réflectivité de cette structure multicouche sera donnée par :  $R = r_x^2$

A fin d'inclure l'effet de la rugosité dans les calculs, il faut utiliser le facteur de Debye Waller. Avant d'utiliser la formule (II-1), tous les coefficients de Fresnel doivent être multipliés par ce facteur, ce qui rend le calcul délicat.

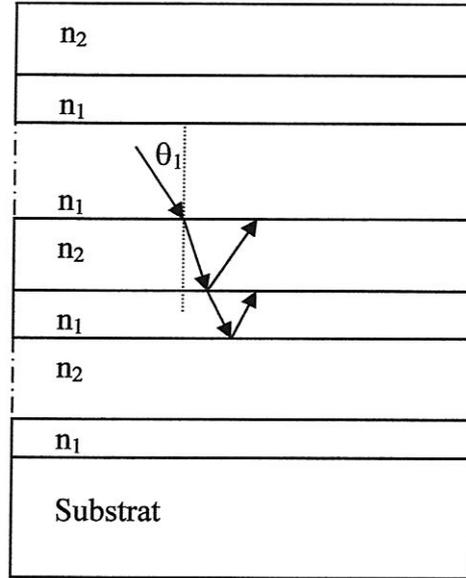


Figure II-2: Réflexion d'une onde par une multicouche

**b) Méthode de Fourier**

La réflectivité et la sélectivité d'une structure multicouche peuvent être calculées en utilisant plusieurs modèles théoriques. La méthode de Fourier permet d'arriver à une solution analytique, basée sur la transformation de la densité  $\rho(z)$  dépendante des électrons de profondeur [15]. La réflectivité de la structure totale  $R(q_z)$  est :

$$R(q_z) = R_f(q_z) \left| \frac{1}{\rho(\infty)} \int \frac{d\rho(z)}{dz} e^{iq_z z} dz \right|^2 \tag{II-6}$$

où  $q_z$  est le vecteur d'onde d'expression :

$$q_z = 2 \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta$$

avec :  $R_f(q_z)$  : réflectivité de Fresnel d'un substrat .

$\rho(\infty)$  : densité des électrons.

Cette méthode néglige l'absorption et la dispersion multiple dans la structure, et par conséquent elle ne peut pas être employée pour l'analyse quantitative de la structure multicouche. Qualitativement, cette théorie s'avère très utile pour expliquer pourquoi la réflectivité la plus élevée est réalisée pour les matériaux très différents par leurs indices de réfraction. On peut facilement expliquer, en utilisant la méthode de Fourier, l'effet de la pénétration en profondeur en négligeant l'absorption, et sur la sélectivité du miroir multicouche. En raison de l'absorption, la profondeur de pénétration du rayonnement n'est pas infinie et en première approximation, on peut donc supposer que toutes les couches au-dessous d'une certaine profondeur critique ne contribuent pas au signal réfléchi tandis que les couches supérieures contribuent complètement.

### c) Méthode matricielle

Pour des interfaces et surface présentant des anomalies, il n'existe pas des solutions exactes discrètes (par exemple surface diffuses). Les structures doivent être rapprochées par une série de petites couches présentant des interfaces planes. Une bonne approximation pourrait exiger plus de deux couches par période d'une structure ; dans ce cas, une matrice de transfert est plus facile à employer [15-17]. Cette méthode relie l'onde progressive  $E^+(z)$  et l'onde régressive  $E^-(z)$  de chaque côté de la structure par la matrice carrée  $M$  ( $2 \times 2$ ) comme suit :

$$[E(z)] = [M] [E(z+d)] \quad (\text{II-7})$$

$$\begin{bmatrix} E^+(z) \\ E^-(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E^+(z+d) \\ E^-(z+d) \end{bmatrix} \quad (\text{II-8})$$

$d$  étant l'épaisseur de la structure. La matrice  $M$  est le résultat du produit de ( $L$ ) matrices carrées dont chacune constitue la période de la structure, soit :

$$M = \prod_{i=1}^{i=L} M_i \quad , \quad M_i \text{ et la matrice qui caractérise une période.}$$

$$M = (M_i)^L \quad (\text{II-9})$$

$L$  : est le nombre de périodes.

La réflectivité ( $\mathbf{R}$ ) de la structure est donnée par :

$$R = \frac{E^-(z)}{E^+(z)} \quad (\text{II-10})$$

L'avantage principal de cette méthode réside dans sa capacité d'exécuter des calculs rapides pour des systèmes comportant un grand nombre de périodes.

## 2.2. Modélisation d'une multicouche par la méthode matricielle

Le calcul de la réflexion et de la transmission d'une structure de grande taille est fastidieux. C'est pourquoi on utilise la méthode d'Abèles basée sur le formalisme de la matrice de transfert. Cette méthode progressive décrit l'évolution du champ électromagnétique couche après couche dans la structure en prenant en compte les conditions aux interfaces [15-20].

### 2.2.1. Réflexion et transmission d'une monocouche

La monocouche est illustrée sur la figure II-3. Nous symboliserons les ondes progressives par (+) et les ondes régressives par (-) et l'interface entre le film et le substrat par (s). Les équations de continuité des champs électrique  $\vec{E}$  et magnétique  $\vec{H}$  sont :

$$\vec{E} = \vec{E}^+ + \vec{E}^- \quad \text{et} \quad \vec{H} = \vec{H}^+ + \vec{H}^- \quad (\text{II-11})$$

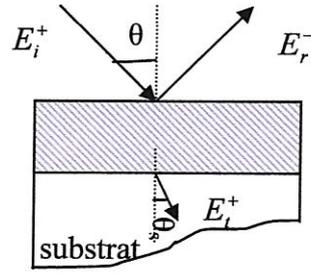


Figure II-3 : Schéma d'une monocouche

Le système Aire/couche/substrat, est défini à partir des équations :

$$E_1 = E_i + E_r$$

$$H_1 = N_0(E_i - E_r) \tag{II-12}$$

$$E_2 = E_t$$

$$H_2 = N_s E_t$$

$N_0, N_s$  sont les indices respectifs des milieux d'entrée (air) et de sortie (substrat).

$(E_1, H_1), (E_2, H_2)$  sont les amplitudes des champs électriques et magnétiques dans les milieux d'entrée et de sortie respectivement.

Ces équations peuvent se mettre sous forme matricielle :

$$\begin{bmatrix} E_1 \\ H_2 \end{bmatrix} = [M] \begin{bmatrix} E_2 \\ H_2 \end{bmatrix} \tag{II-13}$$

La matrice élémentaire carrée  $[M]$  de dimension  $2 \times 2$  se présente sous la forme suivante :

$$M = \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{N} \sin \delta \\ i.N \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \tag{II-14}$$

Où 
$$\delta = \frac{2.\pi.d}{\lambda} \tilde{n} \cos \theta$$

La quantité  $\tilde{n}.d.\cos\theta$  représente l'épaisseur optique effective de la couche mince éclairée sous l'angle  $\theta$ .  $N$  représente l'indice de réfraction effectif du milieu (substrat ou couche mince), il dépend de la nature de la polarisation et s'écrit :

$$N = \begin{cases} \tilde{n} \cos \theta & \text{polarisation 's'} \\ \frac{\tilde{n}}{\cos \theta} & \text{polarisation 'p'} \end{cases}$$

Les coefficients de réflexion ( $r$ ) et de transmission ( $t$ ) complexes en amplitude de la couche sont alors déduits des équations (II-12) :

$$\begin{cases} E_1 = \cos \delta . E_2 + \frac{i}{N} . N_s . \sin \delta . H_2 \\ H_1 = i . N . \sin \delta . E_2 + N_s . \cos \delta . H_2 \end{cases} \quad (\text{II-15})$$

Sachant que :  $r = \frac{E_r}{E_i}$  ,  $t = \frac{E_t}{E_i}$  , (II-15) devient :

$$\begin{cases} 1 + r = \left( \cos \delta + \frac{i}{N} . N_s . \sin \delta \right) t \\ N_0 (1 - r) = (i . N . \sin \delta + N_s . \cos \delta) t \end{cases} \quad (\text{II-16})$$

On obtient alors :

$$r = \frac{(N_0 - N_s) \cos \delta + i \left( \frac{N_0 N_s}{N} - N \right) \sin \delta}{(N_0 + N_s) \cos \delta + i \left( \frac{N_0 N_s}{N} + N \right) \sin \delta} \quad (\text{II-17})$$

$$t = \frac{2N_0}{(N_0 + N_s) \cos \delta + i \left( \frac{N_0 N_s}{N} + N \right) \sin \delta} \quad (\text{II-18})$$

Les coefficients de réflexion ( $\mathbf{R}$ ) et de transmission ( $\mathbf{T}$ ) en intensité sont :

$$R = r.r^* \quad (II-19)$$

$$T = \frac{n_s \cos \theta_2}{n_0 \cos \theta_0} . t.t^*$$

$r^*$  et  $t^*$  sont respectivement les nombres complexes conjugués de  $r$  et de  $t$ .

### 2.2.2. Réflexion et transmission d'une période composée de deux couches minces

Dans le cas où la multicouche est constituée par la répétition d'une période composée de deux couches minces nanométriques d'éléments métalliques, on peut donc représenter chaque couche par une matrice carrée ( $[M_1]$  et  $[M_2]$ ) (voir la figure II-4). La matrice  $[M]$  de la période est alors :

$$[M] = [M_1] [M_2] \quad (II-20)$$

Le produit de deux matrices n'étant pas commutatif, il est donc nécessaire de tenir compte de la présentation de la matrice dans la période.

$$M = \begin{pmatrix} \cos \delta_1 & \frac{j}{N_1} \sin \delta_1 \\ jN_1 \sin \delta_1 & \cos \delta_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \delta_2 & \frac{j}{N_2} \sin \delta_2 \\ jN_2 \sin \delta_2 & \cos \delta_2 \end{pmatrix} \quad (II-21)$$

$[M_1]$  : Matrice de l'élément formant une interface avec l'air.

$$M = \begin{bmatrix} \cos \delta_1 \cos \delta_2 - \frac{N_2}{N_1} \sin \delta_1 \sin \delta_2 & \frac{i}{N_2} \cos \delta_1 \sin \delta_2 + \frac{i}{N_1} \sin \delta_1 \cos \delta_2 \\ iN_1 \sin \delta_1 \cos \delta_2 + iN_2 \sin \delta_2 \cos \delta_1 & \cos \delta_1 \cos \delta_2 - \frac{N_1}{N_2} \sin \delta_1 \sin \delta_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix} \quad (II-22)$$

$$\text{avec : } \delta_i = \frac{2.\pi.d_i}{\lambda} \tilde{n}_i \cos \theta \quad i=1,2$$

La matrice  $[M]$ , appelée matrice de transfert de la couche, contient les indices de réfraction ( $\tilde{n}_i$ ) des deux milieux, les épaisseurs des couches minces ( $d_i$ ) et l'angle d'incidence ( $\theta$ ). Les équations (II-13) et (II-22) donnent :

$$\begin{cases} 1+r = (a + N_s b).t \\ N_0(1-r) = (c + N_s d).t \end{cases} \quad (\text{II-23})$$

Ce qui permet d'écrire :

$$r = \frac{N_0(a + N_s b) - (c + N_s d)}{N_0(a + N_s b) + (c + N_s d)} \quad (\text{II-24})$$

$$t = \frac{2.N_0}{N_0(a + N_s b) + (c + N_s d)} \quad (\text{II-25})$$

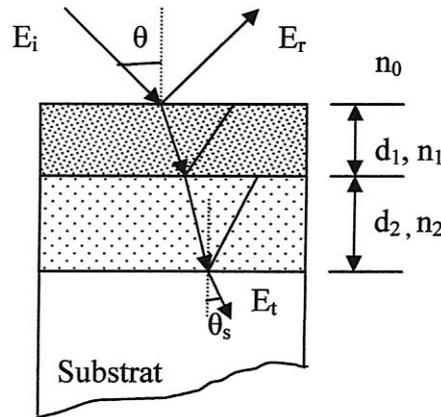


Figure II-4 : Schéma d'une période (bicouche)

### 2.2.3. Réflexion et transmission d'une multicouche

Considérons une structure à  $N$  périodes dont chacune est constituée de deux couches minces d'indices  $\tilde{n}_1$  et  $\tilde{n}_2$  (figure II-5). Les conditions de continuité entre les interfaces  $\Sigma_1 (z=0)$  et  $\Sigma_2 (z=d)$ , (figure II-5) soit:

Sachant que :  $E_i = E_1^+ = e^{i(\omega t - k_0 z)}$

$$E_c^+ = A e^{i(\omega t - \tilde{n} k_0 z)}$$

$$E_c^- = B e^{i(\omega t - \tilde{n} k_0 z)}$$

$$z = 0 \Rightarrow \begin{cases} E_1(z=0) = A + B \\ H_1(z=0) = q(A + B) \end{cases} \quad (\text{II-26})$$

$$(z = d) \Rightarrow \begin{cases} E_2(z = d) = A e^{-i\tilde{n} k_0 d} + B e^{i\tilde{n} k_0 d} \\ H_2(z = d) = q(A e^{-i\tilde{n} k_0 d} - B e^{i\tilde{n} k_0 d}) \end{cases} \quad (\text{II-27})$$

avec :  $q = \frac{\tilde{n}}{\sqrt{\mu_0}}$  ,  $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$  .

La combinaison des deux systèmes (II-26) et (II-27) donne :

$$E_1 = \left( \frac{e^{i\tilde{n} k_0 d} + e^{-i\tilde{n} k_0 d}}{2} \right) E_2 + \left( \frac{1}{q} \right) \left( \frac{e^{i\tilde{n} k_0 d} - e^{-i\tilde{n} k_0 d}}{2} \right) H_2 = (\cos(\tilde{n} k_0 d)) . E_2 + \left( \frac{i}{q} \sin(\tilde{n} k_0 d) \right) . H_2 \quad (\text{II-28})$$

et

$$H_1 = q \left( \frac{e^{i\tilde{n} k_0 d} - e^{-i\tilde{n} k_0 d}}{2} \right) E_2 + \left( \frac{e^{i\tilde{n} k_0 d} + e^{-i\tilde{n} k_0 d}}{2} \right) H_2 = (i q \sin(\tilde{n} k_0 d)) E_2 + (\cos(\tilde{n} k_0 d)) H_2 \quad (\text{II-29})$$

Donc la couche peut être représentée par une matrice carrée **M** tel que :

$$M = \begin{bmatrix} \cos(\tilde{n} k_0 d) & \frac{i}{q} \sin(\tilde{n} k_0 d) \\ i q \sin(\tilde{n} k_0 d) & \cos(\tilde{n} k_0 d) \end{bmatrix} \quad (\text{II-30})$$

$$[M_p] = [M_1] [M_2]$$

Si  $M_p$  est la matrice de la période, la matrice de transfert de la structure multicouche sera alors :

$$M = \prod_{i=1}^N M_p = (M_p)^N \quad (\text{II-31})$$

avec  $M_p = \begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix}$

$$a = \cos \delta_1 \cos \delta_2 - \frac{N_2}{N_1} \sin \delta_1 \sin \delta_2$$

$$b = \frac{i}{N_2} \cos \psi_1 \sin \psi_2 + \frac{i}{N_1} \sin \psi_1 \cos \psi_2$$

$$c = iN_1 \sin \delta_1 \cos \delta_2 + iN_2 \sin \delta_2 \cos \delta_1$$

$$d = \cos \delta_1 \cos \delta_2 - \frac{N_2}{N_1} \sin \delta_1 \sin \delta_2$$

La matrice de transfert de la structure est  $M$ , tel que :

$$M = \begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix}^N = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix} \quad (\text{II-32})$$

Les équations, de continuité du champ électromagnétique aux interfaces d'entrée ( $\Sigma_1$ ) et de sortie ( $\Sigma_2$ ) sont données par (II-33) :

$$\begin{bmatrix} E_1 \\ H_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_2 \\ H_2 \end{bmatrix} \quad (\text{II-33})$$

Qu'on peut également écrire :

$$\begin{cases} 1 + r = (m_{11} + N_s m_{12})t \\ N_0(1 - r) = (m_{21} + N_s m_{22}) \end{cases} \quad (\text{II-34})$$

Les coefficients de réflexion ( $r$ ) et de transmission ( $t$ ) pour une structure multicouche idéale sont :

$$r = \frac{N_0(m_{11} + N_s m_{12}) - (m_{21} + N_s m_{22})}{N_0(m_{11} + N_s m_{12}) + (m_{21} + N_s m_{22})} \quad (\text{II-35})$$

$$t = \frac{2.N_0}{N_0(m_{11} + N_s m_{12}) + (m_{21} + N_s m_{22})}$$

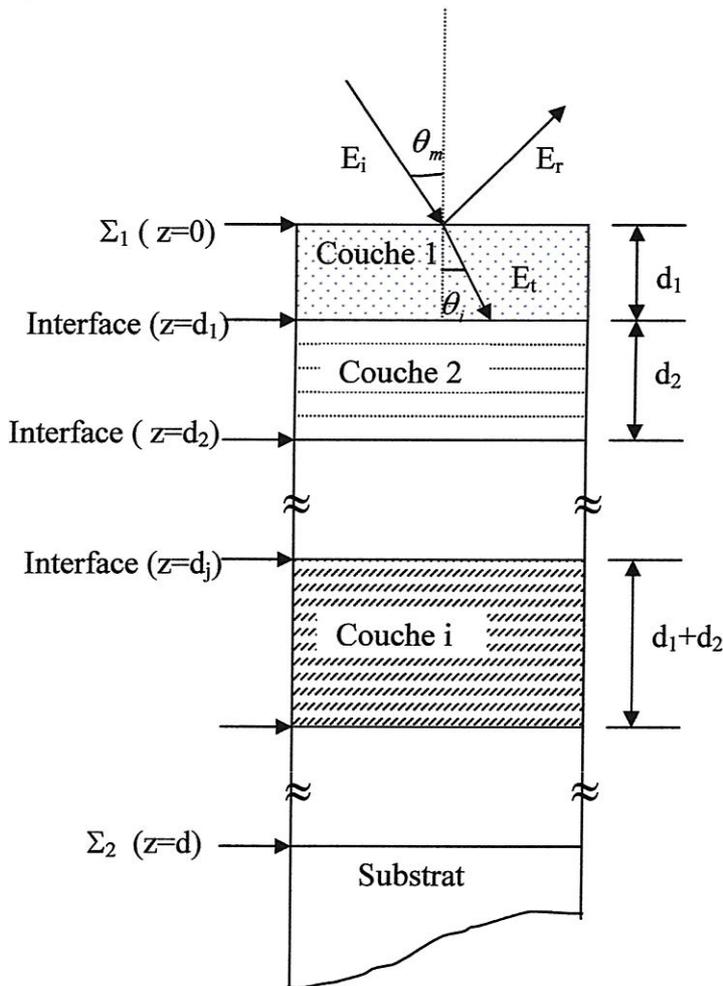


Figure II-5 : Schéma d'une multicouche

# Chapitre 3

## Indice de réfraction dans le domaine des rayons X

### 3.1 Historique

A la fin de 1895 le physicien allemand Wilhelm C. Röntgen annonçait une nouvelle découverte, qu'il appellera plus tard rayons X. Professeur de physique à Strasbourg (1876), il obtient, en 1900, la chaire de physique de l'université de Munich et la direction du nouvel institut de physique. Il met en évidence, en 1885, qu'un diélectrique polarisé a les mêmes effets magnétiques qu'un courant; mais il restera surtout célèbre pour sa découverte des rayons X. Röntgen parvient à photographier le squelette de sa main le 28 décembre 1895. Dès lors, il remet à la société médico-physique de Würzburg un article qu'elle publie aussitôt dans son bulletin qui s'intitule 'Sur une nouvelle espèce de rayons'. Il reçoit, les jours qui suivent des lettres de félicitations enthousiastes signées de Boltzmann, Kelvin, Poincaré, Stokes....il se voit offrir pour sa découverte le premier de tous les prix Nobel de physique. Cette découverte trouve, dans un premier temps, ses applications dans le domaine principalement de la médecine. Les mille articles qui paraissent sur les rayons X en 1896 relève en majorité du domaine de la médecine. Röntgen interprète les rayons X comme étant une vibration longitudinale de l'éther. Il faudra seize ans pour que Von Laue finisse par établir la nature véritable des rayons X comme étant de la lumière mais de très courte longueur d'onde. A la même période, les frères Bragg utilisent des rayons X monochromatiques pour la diffraction sur les plans des cristaux. En 1913, ils considèrent que la diffraction correspond à une réflexion sur certains niveaux dans le cristal et ils ont introduit la fameuse équation :

$2d \sin \theta = n \lambda$  (Annexe 6). Stimulé par le modèle d'atome de Niels Bohr publié en 1913, H.G.J. MOSELEY, il étudie l'ensemble des spectres de rayons X des éléments du calcium au zinc. Il montre ainsi que la composition chimique d'une substance peut être déterminée complètement par son spectre de rayons X. Cela marque le début de l'application de la fluorescence X dans

l'analyse chimique. Mais ce n'est que dans les années 50 que l'application de cette méthode deviendra courante. Il fallait, en effet, trouver des procédures de préparation d'échantillons plus simples. Aujourd'hui les applications des rayons X sont diverses [21].

### 3.2. Définition

On appelle rayons X, les radiations électromagnétiques de longueurs d'onde comprises entre 0,1 et 50 Å environ. Les rayons X résultent du bombardement d'une anticathode par un faisceau d'électrons émis par un filament chauffé et accélérés par une ddp de plusieurs kev. Freinés par les atomes de l'anode, les électrons perdent progressivement leur énergie cinétique, ils émettent un rayonnement électromagnétique présentant un spectre continu dont la longueur d'onde maximale est fixée par l'énergie du rayonnement incident  $E_0$ , soit :

$$h\nu \leq E_0 \quad d'ou \quad \lambda \geq \frac{hc}{E_0}$$

Si l'énergie est suffisante, les électrons incidents peuvent aussi exciter des atomes de l'anode. Au cours de la désexcitation d'un atome, l'énergie  $\Delta W$  est restituée sous forme d'un photon d'énergie

( $h\nu = \Delta W$ ). Le domaine des rayons X est limité du côté des grandes longueurs d'onde par l'absorption des rayons X (dits rayons mous) par la matière. Les rayons X deviennent très difficiles à utiliser et à détecter quand la longueur d'onde croît. Du côté des petites longueurs d'onde, il faut utiliser des sources à très haute tension pour la production des rayons X, appelés rayons durs. Le domaine des rayons X recouvre celui des rayons gamma qui sont des radiations électromagnétiques émises par certains atomes radioactifs (depuis le noyau de l'atome), tandis que les rayons X sont obtenus par des processus qui se produisent au niveau des orbitales des électrons [22].

Deux types d'interactions entre les photons X et la matière sont envisageables: l'effet photoélectrique qui domine aux faibles énergies et l'effet Compton (figure III-1). Lorsqu'un faisceau de rayons X pénètre dans un milieu matériel, on constate une diminution progressive de son intensité à sa sortie, due essentiellement à l'interaction des photons avec les électrons.

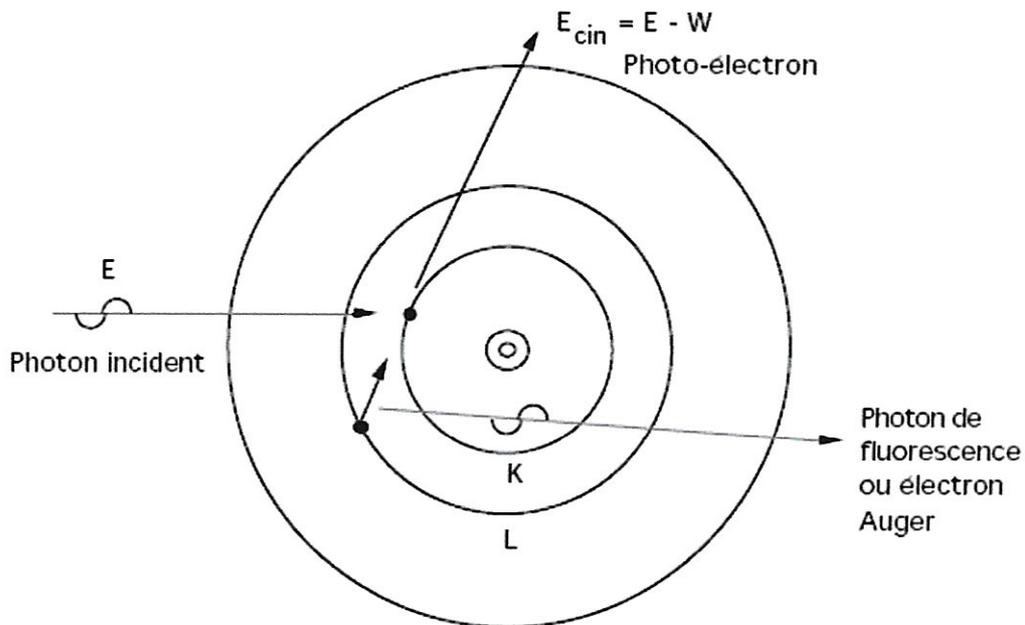
Dans un tel processus, l'énergie perdue se retrouve sous deux formes: une partie absorbée par le milieu et l'autre diffusée dans des directions différentes de celle du faisceau incident [23]. La relation d'atténuation de Beer Lambert (phénomène d'absorption) est la suivante :

$$I = I_0 e^{-\mu \cdot l} \quad (\text{III-1})$$

$\mu$  : coefficient linéaire d'absorption.

$I_0$  : intensité initiale du faisceau de rayons X .

$l$  : longueur traversée dans le milieu matériel .



**Figure III-1:** Schéma illustrant l'effet photoélectrique

- $E$  : l'énergie du photon incident.

- $W$  : l'énergie de liaison de l'électron.

- $E_{\text{cin}}$  : l'énergie cinétique de l'électron émis.

### 3.3. Sources de rayons X

En pratique, il existe deux sources en spectrométrie de fluorescence X [24].

- ✓ Les tubes à rayons X utilisent le bombardement électronique.
- ✓ Les éléments radioactifs utilisent le rayonnement gamma émis par leurs noyaux.

Il existe aussi d'autres moyens de production comme le rayonnement synchrotron ou l'émission X induite par protons. Cependant, elles nécessitent des installations lourdes, peu courantes dans les laboratoires d'analyses.

#### 3.3.1. Tubes à rayons X

La source usuelle des rayons X est le tube **Coolidge**, qui prend le nom de son inventeur (1917). C'est un tube à vide comportant deux électrodes. Les électrons sont émis par un filament de tungstène (cathode) chauffé par un courant, accélérés par une différence de tension et focalisés sur une cible métallique (anode) refroidie à l'eau. Si la source de tension est un simple transformateur, le tube n'émet que pendant l'alternance où l'anode est positive. Deux phénomènes bien distincts sont à l'origine de la nature des rayons X produits.

- ✓ l'émission du spectre continu : Le spectre est dit continu parce que l'intensité de l'émission varie de façon continue en fonction de la longueur d'onde mais il s'arrête brusquement du côté des courtes longueurs d'onde. Cette limite inférieure est proportionnelle à la tension de fonctionnement du tube. Une approche simple de la théorie quantique rend compte de cette limite inférieure. L'électron d'énergie  $eV$  peut, suite à son interaction avec la matière, donner naissance à un photon dont l'énergie est plus grande que celle de l'électron, d'où une fréquence limite de la radiation donnée par la relation :

$$h\nu_m = \frac{hc}{\lambda_m} = eV \quad (\text{III-2})$$

Si l'interaction ne transfère pas toute l'énergie de l'électron au photon, celui-ci aura une énergie inférieure à  $h\nu_m$ , d'où l'apparition d'un spectre continu s'étendant du côté des grandes longueurs d'onde. Il débute brusquement à partir du seuil, c'est-à-dire qu'il contient en

proportion des longueurs d'onde très proches de la limite inférieure (figure III-2). Le maximum d'intensité correspond à une longueur d'onde de l'ordre de  $(3/2 \lambda_m)$ . Il est remarqué que l'intensité du spectre continu est proportionnelle au nombre atomique de l'élément de l'anticathode, d'où l'intérêt d'employer des éléments lourds notamment lorsqu'on veut obtenir un rayonnement blanc c'est-à-dire un rayonnement où toutes les longueurs d'onde sont représentées.

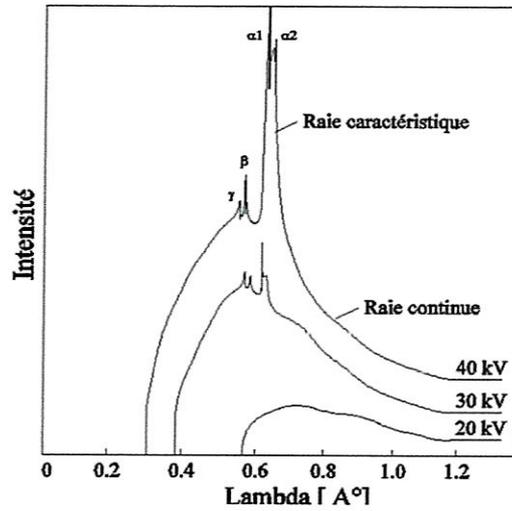


Figure III-2 : Spectres des rayons X de (Ag).

- ✓ L'émission des raies caractéristiques : au spectre continu se superpose un spectre de raies caractéristiques des atomes constituant l'anticathode (figure III-3). Les couches électroniques qui interviennent dans l'émission des raies X sont les couches profondes de l'atome, par conséquent les niveaux d'énergie accessibles sont donc limités et les spectres X sont très simples.

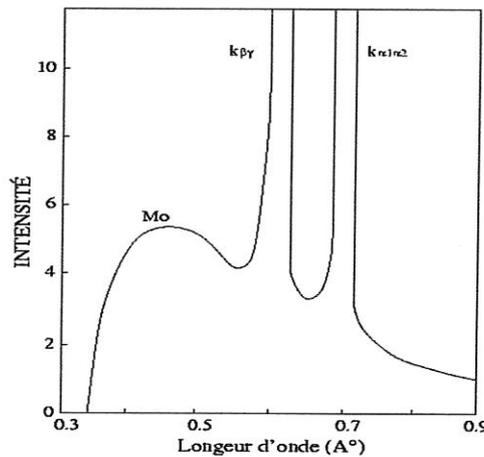


Figure III-3: Raies caractéristiques du (Mo).

Pour qu'une raie K par exemple soit émise, il faut que la couche K soit ionisée : l'électron doit posséder une énergie supérieure à l'énergie de liaison de l'électron appartenant à la couche K de l'atome. Les raies caractéristiques les plus intenses sont les raies  $k_{\alpha}$  qui correspondent aux transitions des couches L vers les couches K. A titre d'exemple on a :  $\lambda_{k\alpha}=0.71 \text{ \AA}$  pour le molybdène et  $\lambda_{k\alpha}=1.54 \text{ \AA}$  pour le cuivre. Les raies  $k_{\alpha}$  sont constituées d'un doublet  $k_{\alpha 1}$ ,  $k_{\alpha 2}$  de longueurs d'ondes voisines. Les caractéristiques des raies qui résultent de l'ionisation directe des atomes de l'anode sont les suivantes :

- ✓ Leur présence dépend de la différence de potentiel et ne sont observées que si le voltage est supérieur au voltage critique d'excitation.
- ✓ Elles apparaissent en séries : toutes les raies d'une série sont présentes ou bien aucune ne l'est.

### 3.3.2. Sources radioactives

Le rayonnement gamma émis par les noyaux radioactifs de certains atomes peut également arracher des électrons des couches profondes des atomes et provoquer leur fluorescence. Il y a des atomes radioactifs qui sont des sources de rayons X monochromatiques ; ces dernières sont bien moins intenses que les émissions caractéristiques d'un tube à rayons X, c'est à dire que le fond continu est beaucoup plus faible. La quantité de matière radioactive qui serait nécessaire pour atteindre les mêmes intensités occuperait donc un volume incompatible avec les applications usuelles des rayons X.

### 3.3.3. Comparaison du spectre continu et du spectre de raies

L'existence de raies caractéristiques, en particulier de la raie  $K\alpha$  très intense et très isolée, est très fondamentale pour la radiocristallographie. L'énergie de la raie  $K\alpha$  comparée à celle contenue dans une bande de spectre continu de même largeur est très grande. Par contre, quand une large bande spectrale intervient, il faudra faire attention à son action vis-à-vis de l'énergie de la raie  $K\alpha$ .

### 3.4 Indice de réfraction dans le domaine des rayons x

Quand une onde se propage dans un milieu matériel, les atomes le constituant sont polarisés en émettent des ondes de même fréquence que l'onde excitatrice interférant avec cette dernière. L'onde résultante ne se propage donc plus à la vitesse de la lumière mais à une vitesse  $(c/n)$ , où  $(n)$  est l'indice de réfraction du matériaux et  $(c)$  est la vitesse de la lumière dans le vide.

La formule théorique donnant l'indice de réfraction complexe d'un corps pur dans le domaine des rayons X est la suivante [25-28]:

$$\tilde{n} = 1 - \delta - i\beta \quad (\text{III-3})$$

où  $(n = 1 - \delta)$  est l'indice de réfraction et  $(k = \beta)$  est l'indice d'extinction, appelé aussi coefficient d'absorption.

#### 3.4.1. Dispersion et indice de réfraction

L'indice optique d'un corps est une grandeur décrivant de façon macroscopique l'interaction de l'onde avec la matière. L'onde incidente est une onde plane monochromatique avec une phase spécifique :

$$E(\mathbf{r}, t) = E_0 \cdot \mathcal{E} \cdot e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)} \quad (\text{III-4})$$

$\mathbf{k}$  : vecteur de l'onde plane électromagnétique,  $\mathcal{E}$  : vecteur de polarisation.

L'interaction entre le rayonnement électromagnétique de courte longueur d'onde X (30 -2000 eV) et la matière peut être décrite à l'aide des facteurs de diffusion atomique  $f = f_1 + if_2$ . La théorie montre que ces facteurs, obtenus des données de section efficaces de photo absorption, sont reliés aux constantes optiques du matériau ; en discutant la dispersion, il est usuel de présenter le concept de l'oscillateur  $g_s$ . Dans le modèle semi classique simple  $g_s$  correspond au nombre d'électrons ayant une fréquence de résonance  $\omega_s$  [26-30]. Les forces de l'oscillateur dans ce modèle obéissent à la règle de somme :  $\sum g_s = Z$ .

Le facteur de dispersion peut alors être écrit comme suit :

$$f^0(\omega) = \sum_s \frac{g_s \omega^2}{\omega^2 - \omega_s^2 + i\gamma\omega} \quad (\text{III-5})$$

où  $f^0(\omega)$  est le facteur de dispersion .

L'indice de réfraction est donné par :

$$\tilde{n} = 1 - \frac{r_e n_a \lambda^2}{2\pi} (f_1 - i f_2) \quad (\text{III-6})$$

$f_1$  et  $f_2$  : facteurs de diffusion liés à la dispersion et à l'absorption respectivement (  $f_1$  et  $f_2$  peuvent être calculés théoriquement par les relations de Kramers-Kronig)

Donc

$$\tilde{n} = n_1 + i n_2 = (1 - \delta) + i\beta \quad (\text{III-7})$$

où  $\delta$  est le coefficient de dispersion et  $\beta$  est le coefficient d'absorption du matériau dépendant de la longueur d'onde  $\lambda$  du rayonnement X incident et du facteur de diffusion atomique complexe ( $f^0 = f_1^0 - i f_2^0$ ). Les équations ci-dessus permettent d'écrire les expressions de  $\delta$  et  $\beta$  :

$$\begin{aligned} \delta &= \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_1^0(\omega) \\ \beta &= \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_2^0(\omega) \end{aligned} \quad (\text{III-8})$$

- $n_a$  : la densité des électrons

-  $r_e$ : le rayon classique de l'électron ( $r_e = 2.813 \cdot 10^{-16}$  m)

La valeur de  $\beta$ , indiquant l'adsorption, dépend du coefficient d'adsorption linéaire  $\mu$  par la

$$\text{relation : } \beta = \frac{\lambda \cdot \mu}{2\pi}.$$

La partie réelle traduit la réfraction du corps ; dans le domaine des rayons X, elle s'écrit sous la forme :  $n = 1 - \delta$ .

Dans le domaine des rayons X, le terme correctif à l'unité  $\delta$  est proportionnel à la densité du matériau et au carré de la longueur d'onde :  $\delta = 1.3 \cdot 10^{-6} \rho \lambda^2$

avec :  $\lambda$  : longueur d'onde ( $\text{Å}^\circ$ )

$\rho$  : masse volumique du matériau ( $\text{g/cm}^3$ )

A l'aide de cette approximation, on remarque que l'indice tend vers l'unité avec des valeurs inférieures, et par conséquent au passage vide/matériau, l'onde n'est donc que légèrement réfractée vers l'interface. Ainsi, pour les rayons X, lorsque les angles deviennent de plus en plus rasants, l'onde se propage de plus en plus parallèlement à l'interface [31-32]. Le cas limite  $\theta_c$ , appelé angle critique, correspond à l'angle pour lequel la direction de l'onde réfractée est exactement parallèle à l'interface. La relation de Descartes donne :  $\sin(\theta_c) = n = 1 - \delta$

Lorsque  $\theta$  est inférieur à  $\theta_c$ , l'onde est fortement réfléchi. La déviation est alors supérieure et l'onde se déplace dans le matériau pratiquement parallèlement à l'interface, en restant localisée dans une épaisseur de quelques nanomètres. Une telle onde est appelée onde évanescente.

Cependant, dans notre étude nous avons utilisé la base de données connue sous le nom des constantes de D.Windt [33]. Les constantes optiques de cette compilation ont été déterminées par les mesures de réflexion sur les couches minces de divers matériaux et ont ensuite été calculées en tenant compte de la rugosité de la surface. Cette base de données est souvent utilisée pour l'interprétation des résultats expérimentaux et pour leur comparaison avec les mêmes résultats obtenus en utilisant les facteurs de diffusion atomique.

Dans le tableau /1/ ci-dessous sont rapportées, pour  $\lambda=1.54 \text{ Å}^\circ$ , les valeurs des facteurs de dispersion et d'absorption  $f_1^0$  et  $f_2^0$  de quelques matériaux ainsi que les coefficients  $\delta$  et  $\beta$  correspondants calculés à partir de la relation (III-8), et comparées à des valeurs expérimentales.

**Tableau III-1:** Valeurs de  $\delta$  et  $\beta$ , comparées aux valeurs expérimentales, pour  $\lambda=1.54 \text{ Å}^\circ$ .

matériaux	f1	f2	$\delta \cdot 10^{+6}$	$\beta \cdot 10^{+8}$	$\delta(\text{exp}) \cdot 10^{+6}$	$\beta(\text{exp}) \cdot 10^{+8}$
W	68.9856	5.76854	47.08	396.9	45,7	400,8
C	6.01917	0.009597	7.14	1,153	6,8	10.1
Ni	25.003	0.524	24.08	2408	24,35	50
Mn	24.461	2.832	20.45	235.7	20,802	240.38
Si	14.297	0.3248	7.68	17.64	6,8	15,3

On constate que les valeurs théoriques calculées sont très proches des valeurs expérimentales pour  $\delta$  et légèrement différentes pour quelques matériaux  $\beta$  ; par exemple, le Carbone (C) présente une différence de 0.1 , sa valeur théorique est de l'ordre de  $10^{-8}$  tandis que sa valeur expérimentale est de l'ordre de  $10^{-7}$ .

### 3.4.2. Confrontation des résultats calculés obtenus par d'autres modèles

Il existe plusieurs modèles pour le calcul des indices de réfraction. Nous reprenons dans notre travail deux modèles : le modèle de Lorentz et la théorie Kramers-Kallman-Mark (le modèle KKM) ; les résultats fournis seront confrontés aux résultats obtenus à partir du facteur de diffusion .

Nous présenterons, dans la suite, un bref résumé des deux modèles :

#### a) Modèle de Lorentz

Dans le domaine des rayons X, on peut présenter la constante diélectrique ( $\tilde{\epsilon}$ ) en fonction de l'indice réfraction ( $\tilde{n}$ ) par la relation suivante [1,34] :

$$\tilde{\epsilon} = \tilde{n}^2 \quad (\text{III-9})$$

donc :

$$\tilde{\epsilon} = (1 - \delta_q - i\beta_q)^2 \approx 1 - 2 \cdot \delta_q - 2 \cdot i \cdot \beta_q \quad (\text{III-10})$$

Où  $\delta_q$  et  $\beta_q$  sont respectivement les coefficients de dispersion et d'absorption des électrons symbolisés par la lettre 'q' vérifiant les relations :  $\delta = \sum_q \delta_q$  et  $\beta = \sum_q \beta_q$  .

Par analogie avec l'équation I-22 (chapitre 1), la constante diélectrique partielle est donnée par la relation suivante :

$$\tilde{\epsilon} = \left( 1 + \frac{4 \cdot \pi \cdot N \cdot e^2}{m} \left( \frac{1}{\omega_q^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \right) \right) \quad (\text{III-11})$$

où  $\omega_q$  est la fréquence d'absorption due aux transitions électroniques des électrons de type 'q'. En comparant les relations (III-10) et (III-11), et en supposant l'énergie du matériau  $\omega_q$  très inférieure devant l'énergie du rayonnement utilisé  $\omega$  ( $\lambda \ll \lambda_q$ ), les calculs (Annexe 3) donnent les coefficients de dispersion et d'absorption suivants:

$$\delta = \sum_q \delta_q = \sum_q \frac{2.\pi.N_q.e^2}{m} \cdot \frac{1}{\omega^2 \left(1 - \frac{\omega_q^2}{\omega^2}\right)}$$

$$\beta = \sum_q \beta_q = \sum_q \frac{4.\pi.N_q.e^2}{3.m} \cdot \frac{1}{\omega \left(1 - \frac{\omega_q^2}{\omega^2}\right)^2}$$

(III-12)

Sachant que  $\frac{\omega_q}{\omega} \ll 1$ , on obtient finalement :

$$\delta \cong \frac{2.\pi.e^2}{m.\omega^2} \sum_q N_q \cong \frac{2.\pi.e^2.N}{m.\omega^2}$$

$$\beta \cong \frac{2.\pi.e^4.N}{3.m.c^3.\omega}$$

(III-13)

$$\text{avec : } N = \sum_q N_q = \frac{\rho.N_A.Z}{A}$$

N : est le nombre d'électrons par unité de volume.

$\rho$  : masse volumique.

$N_A$  : nombre d'Avogadro.

Z : nombre atomique.

A : masse atomique du matériau.

En remplaçant les constantes par leurs valeurs numériques, on obtient :

$$\delta \cong 2,7007 \cdot 10^{+10} \frac{\rho.Z.\lambda^2}{A}$$

$$\beta \cong 3,1871 \cdot 10^{-2} \frac{\rho.Z.\lambda}{A}$$

(III-14)

### b) Modèle de Kramers-Kallman-Mark

La théorie de Kramers-Kallman-Mark suppose que chaque oscillateur a une pulsation propre variable  $\omega_j$ ; cet effet nécessite l'introduction d'une fonction de distribution effective pour l'oscillateur de la forme [1]:

$$f_q(\omega_j) = \frac{2 \cdot \omega_q^2}{\omega_j^3} \cdot Z_q \quad (\text{III-15})$$

$\omega_q$  : énergie d'absorption du matériau.

$\omega_j$  : énergie effective de l'oscillateur variant entre  $\omega_q$  et  $\infty$ .

$Z_q$  : charge effective.

L'indice de réfraction complexe est donné par la relation :

$$\tilde{n} = 1 + \frac{4 \cdot \pi \cdot e^2 \cdot N_q \cdot \omega_q^2}{m} \int_{\omega_q}^{\infty} \frac{d\omega_q}{\omega_j^3 (\omega_j^2 - \omega^2 + i \Gamma \cdot \omega)} \quad (\text{III-16})$$

Après intégration, on obtient :

$$\tilde{n} = 1 + \frac{4 \cdot \pi \cdot e^2 \cdot N_q \cdot \omega_q^2}{m} \left[ \frac{1}{2 \cdot \omega (i \Gamma - \omega)} \left( \frac{1}{\omega_q^2} + \frac{1}{\omega (i \Gamma - \omega)} \text{Ln} \left( \frac{\omega_q^2}{\omega_q^2 - \omega^2 + i \Gamma \cdot \omega} \right) \right) \right] \quad (\text{III-17})$$

Si on pose  $s = \frac{\omega}{\omega_q}$  et  $d = \frac{\Gamma}{\omega_q}$ ,  $\tilde{n}$  devient :

$$\tilde{n} = \delta_q + i \cdot \beta_q = \frac{2 \cdot \pi \cdot e^2 \cdot N_q}{m \cdot \omega_q^2} \cdot \frac{\text{Ln}(1 - s^2 + i \cdot s \cdot d) + (s^2 - i \cdot s \cdot d)}{(s^2 - i \cdot s \cdot d)^2} \quad (\text{III-18})$$

Dans le cas où  $s < 1$  ( $\omega_j \ll \omega$ ), un changement de variable est recommandé ; soit :

$$a = \frac{1}{2} \text{Ln} \left[ (1 - s^2)^2 + s^2 d^2 \right]$$

$$b = \tan \left( \frac{s \cdot d}{1 - s^2} \right)^{-1} = \tan y^{-1} \quad \text{avec } y = \frac{s \cdot d}{1 - s^2}$$

Les expressions de  $\tilde{n}$ ,  $\delta_q$  et  $\beta_q$  seront :

$$\tilde{n} = \frac{2.\pi.e^2.N_q}{m.\omega_q^2} \frac{\left(\left(\frac{1}{2}\right)Ln\left[(1-s^2)^2 + s^2.d^2\right] + s^2\right) - i.(s.d - \tan y^{-1})}{s^2.(s^2 - d^2) - i.2.s^3.d} \quad (\text{III-19})$$

$$\delta_q = \frac{2.\pi.e^2.N_q}{m.\omega_q^2} \frac{\left(\left(\frac{1}{2}\right)(s^2 - d^2)Ln\left[(1-s^2)^2 + s^2.d^2\right] - 2.s.d.\tan y^{-1} + s^2(s^2 + d^2)\right)}{s^2.(s^2 - d^2)} \quad (\text{III-20})$$

$$\beta_q = \frac{2.\pi.e^2.N_q}{m.\omega_q^2} \frac{\left(s.dLn\left[(1-s^2)^2 + s^2.d^2\right] + (s^2 - d^2)\tan y^{-1} + s.d.(s^2 + d^2)\right)}{s^2.(s^2 - d^2)}$$

Dans le cas où  $s > 1$ , on fait un autre changement de variables :

$$a = \frac{1}{2} Ln \left[ (1-s^2)^2 + s^2 d^2 \right]$$

$$b = \pi - \tan y^{-1} \quad \text{avec } y = \frac{s.d}{1-s^2}$$

Les expressions de  $\delta_q$  et  $\beta_q$ , pour ce cas seront :

$$\delta_q = \frac{2.\pi.e^2.N_q}{m.\omega_q^2} \frac{\left(\left(\frac{1}{2}\right)(s^2 - d^2)Ln\left[(1-s^2)^2 + s^2.d^2\right] + 2.s.d.\tan(y^{-1})^{-1} + s^2(s^2 + d^2) - 2.\pi.s.d\right)}{s^2.(s^2 - d^2)^2}$$

$$\beta_q = \frac{2.\pi.e^2.N_q}{m.\omega_q^2} \frac{\left(s.dLn\left[(1-s^2)^2 + s^2.d^2\right] + (s^2 - d^2)\tan(y^{-1})^{-1} + s.d.(s^2 + d^2) + \pi(s^2 - d^2)\right)}{s^2.(s^2 - d^2)^2} \quad (\text{III-21})$$

Le terme d'amortissement '  $\Gamma$  ' étant trop faible, on peut donc le négliger. On peut également négliger '  $d$  ' parce qu'il est très faible ('  $d$  ' est relié à '  $\Gamma$  ' par la relation  $d = \Gamma / \omega_q$ ). Pour aboutir aux mêmes expressions de  $\delta_q$  et  $\beta_q$  obtenus par le modèle précédent, il faut se mettre dans le cas où  $s \gg 1$ . Les expressions des deux décrets, après avoir effectué toutes les approximations pour  $\omega \gg \omega_q$  ( $\lambda \ll \lambda_q$ ), sont les suivantes :

$$\delta = \frac{2.\pi.e^2.N}{m} \cdot \lambda^2$$

$$\beta = \frac{2.\pi.e^2.N}{3.m^2.c^4} \lambda$$
(III-22)

On constate que l'expression de  $\delta$  du modèle KKM, est la même que celle du modèle de Lorentz et les valeurs calculées par cette méthode sont proches des valeurs expérimentales. Aussi, l'expression du coefficient d'absorption  $\beta$  est la même obtenue par les deux modèles mais les valeurs calculées qu'elle donne sont très différentes, comparées aux valeurs expérimentales.

Les différences observées entre les valeurs théoriques de  $\beta$  calculées par les modèles de Lorentz et KKM et les valeurs expérimentales sont dues au fait que  $\beta$  varie en  $\lambda^2$  et non en  $\lambda$ . Le tableau /2/ montre les valeurs de  $\delta$  et  $\beta$  des éléments 'C', 'Si' et 'Mn' calculées à partir des équations (III-8) et du modèle de Lorentz :

**Tableau III-2:** Valeurs de  $\delta$  et  $\beta$  calculées pour le modèle de Lorentz et à partir des équations

(III-8) pour  $\lambda=1.54 \text{ \AA}$

Matériaux	Résultats équations (III-8)		Modèle Lorentz	
	$\delta.10^{+6}$	$\beta.10^{+8}$	$\delta.10^{+6}$	$\beta.10^{+8}$
C	7.14	1,1537	7,19	0,551
Si	6.8	17.64	7,42	0,0569
Mn	20.45	235.7	21,802	0,166

# Chapitre 4

## Résultats et discussion

Un intérêt considérable s'est développé pour la fabrication des miroirs utilisés dans les domaines des rayons UV et des rayons X. Ces miroirs travaillant avec les principes d'interférences, pourraient servir pour diverses applications: micro lithographie, astronomie, laser à rayons X, diagnostique de plasma,..... etc.

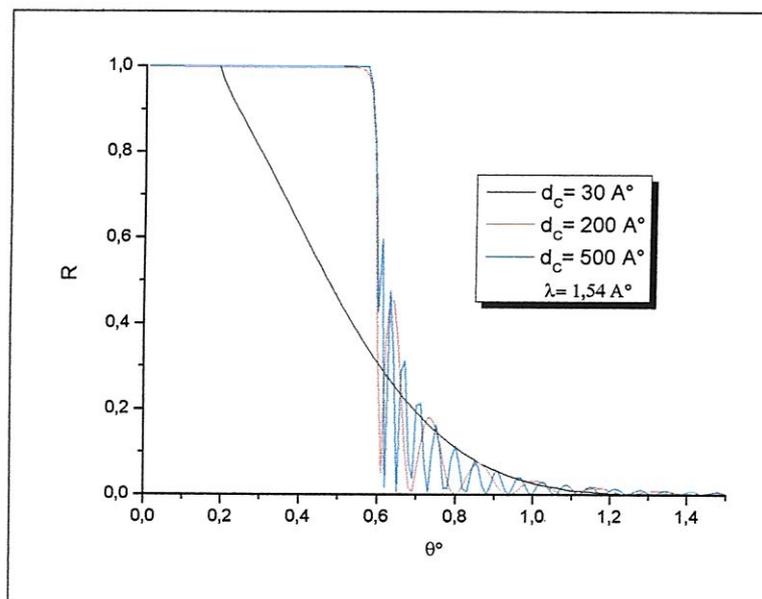
Les multicouches sont confectionnées en déposant alternativement deux matériaux avec des indices aussi différents que possible. Étant donné que tous les matériaux, dans cette région spectrale, sont plus ou moins absorbants, il est important de choisir des matériaux faiblement absorbants d'indices suffisamment différents. A fin d'optimiser le pouvoir de réflexion d'un miroir sur ce domaine d'énergie, d'innombrables matériaux tels que W/C, W/Si, Ni/C, Pd/C et Si/C ont été étudiés dans des conditions particulières pour des applications bien ciblées. Notre étude consiste à simuler un système multicouche en variant ses paramètres tel que les épaisseurs des couches minces formant la période de l'empilement, le nombre de périodes et la longueur d'onde du rayonnement.

### 4.1. Réflexion d'une monocouche

Les structures multicouches à grand pouvoir de réflexion sont des empilements alternés de couches minces d'éléments métalliques d'indices et d'épaisseur différents. Ses structures sont préférées dans le domaine des rayons X parce qu'elles peuvent réfléchir un rayonnement de type X sur un domaine angulaire large et pour des caractéristiques géométriques particulières de la structure, contrairement aux éléments métalliques qui ne peuvent pas réfléchir les rayons X quand ils sont pris seuls et ceci quelque soit leurs épaisseurs. Pour mettre en évidence cette réalité, nous avons calculé les spectres de réflexion d'une couche de Carbone dans le domaine des angles rasants entre  $0^\circ$  et  $2^\circ$ ; les calculs sont effectués pour trois épaisseurs différentes

'd' : 30 Å, 200 Å, 500 Å en supposant que la couche est comprise entre l'air (d'indice  $n_0=1$ ) et la Silice ( d'indice  $n_s = 7.65 \cdot 10^{-6}$ ) et que le rayonnement utilisé est la raie  $k_\alpha$  du Cuivre de longueur d'onde  $\lambda = 1.54 \text{ Å}$  (figure IV-1).

La remarque essentielle qu'on peut faire est qu'au-delà d'un certain angle d'incidence,  $\sim 2^\circ$ , pour le cas du Carbone, l'intensité du signal réfléchi tend vers zéro ; par contre, entre  $0^\circ$  et  $2^\circ$  les courbes calculées ont des allures différentes dépendant de l'épaisseur de la couche mince du Carbone. En effet, si l'épaisseur de la couche est faible ( $d_c = 30 \text{ Å}$ ), le pallier de la réflexion totale est relativement rétréci par rapport aux deux autres cas ( $d_c = 200 \text{ Å}$ ,  $d_c = 500 \text{ Å}$ ) ; sa largeur vaut  $0.25^\circ$  pour  $d_c = 30 \text{ Å}$  et à peu près  $0.625^\circ$  pour  $d_c = 200 \text{ Å}$  et  $d_c = 500 \text{ Å}$ . L'allure de la courbe pour  $d_c = 30 \text{ Å}$  est sans particularité, son intensité décroît avec l'angle d'incidence à partir de  $0.25^\circ$  et s'annule à  $\sim 1.5^\circ$  ; par contre, l'intensité des deux autres courbes décroît brutalement autour d'un angle critique  $\theta_c$  ( $\theta_c \sim 0.625^\circ$ ), présente des franges d'interférences et s'annule au delà de  $1.5^\circ$ .

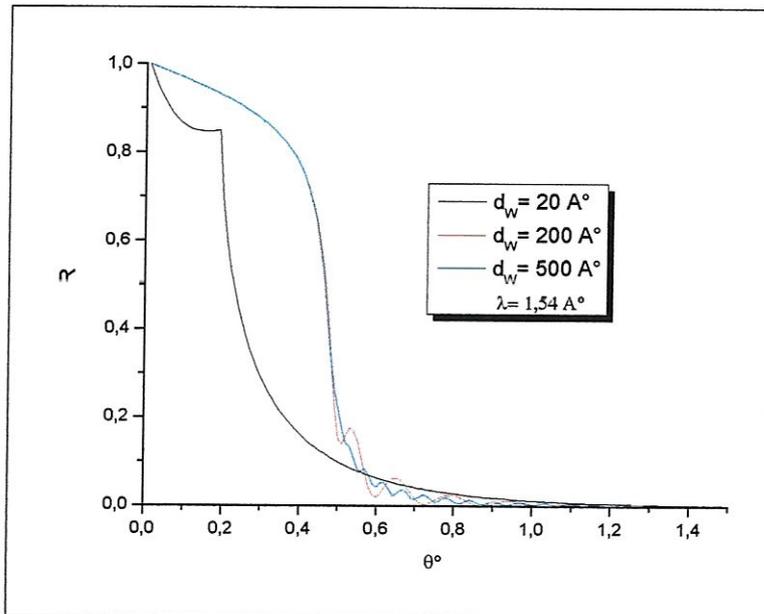


*Figure IV-1 : Réflexion d'une couche de (C) en fonction de son épaisseur dans le domaine des angles rasants.*

Nous avons calculé les courbes de réflexion d'une couche de Tungstène (W) dans les mêmes conditions que le Carbone (même rayonnement, mêmes milieux d'entrée et de sortie et mêmes épaisseurs pour la couche) (figure IV-2) ; elles ne présentent pas un pallier aux faibles incidences ;

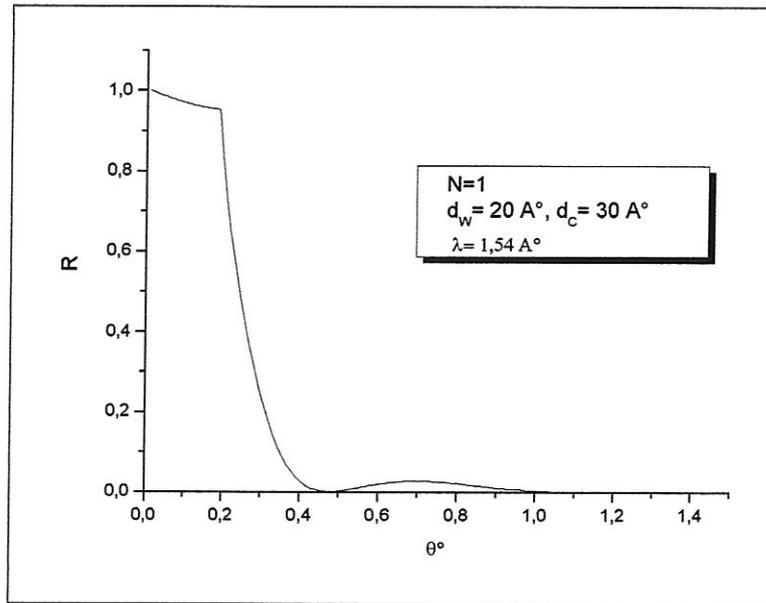
l'angle critique autour duquel l'intensité chute brutalement et à environ  $0.25^\circ$  pour  $d_w = 30 \text{ \AA}$  et à environ  $0.5^\circ$  pour  $d_w = 200 \text{ \AA}$  et  $d_w = 500 \text{ \AA}$ . Des franges d'interférences de faibles amplitudes apparaissent et s'éteignent au-delà de  $1^\circ$  où l'intensité du signal réfléchi tend vers zéro.

Nous avons noté que les spectres de réflexion de (C) et de (W) ne présentent pas de pics intenses au delà de la réflexion totale.



*Figure IV-2 : Réflexion calculée d'une couche (W) en fonction de son épaisseur dans le domaine des angles rasants.*

Les systèmes à plus d'une couche (multicouches) présentent un comportement différent, observé sur leurs courbes de réflexion surtout au delà de la réflexion totale. La figure IV-3 illustre la courbe de réflexion d'un système composé de deux couches minces de Tungstène (W) et de Carbone (C), déposées de façon à ce que (W) soit en contact avec l'air (milieu d'entrée) et (C) en contact avec la Silice (milieu de sortie). La courbe de réflexion du système W/C est simulée en prenant ' $d_w = 20 \text{ \AA}$ ', ' $d_c = 30 \text{ \AA}$ ' et  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ ; son aspect est différent de celles portées sur les deux figures IV-1 et IV-2; la différence réside dans l'apparition d'un pic centré autour de  $1^\circ$  sur la courbe de la figure IV-3, absent sur les courbes des figures IV-1 et IV-2. L'intensité de ce pic est faible dans les conditions de simulations choisies, mais peut être améliorée en travaillant dans d'autres conditions comme nous le verrons dans la suite.



*Figure IV-3: Spectre de réflexion calculée avec une période (W/C) dans le domaine des angles rasants.*

## 4.2. Paramètres des multicouches

L'optimisation du pouvoir de réflexion d'une multicouche passe impérativement par un judicieux choix de certains paramètres tels que les épaisseurs des couches minces formant la période, le nombre de périodes de l'empilement et les indices de réfraction et d'absorption de chaque couche mince dépendant de la longueur d'onde du rayonnement et qui sont nécessaires pour la simulation de spectres de réflexion.

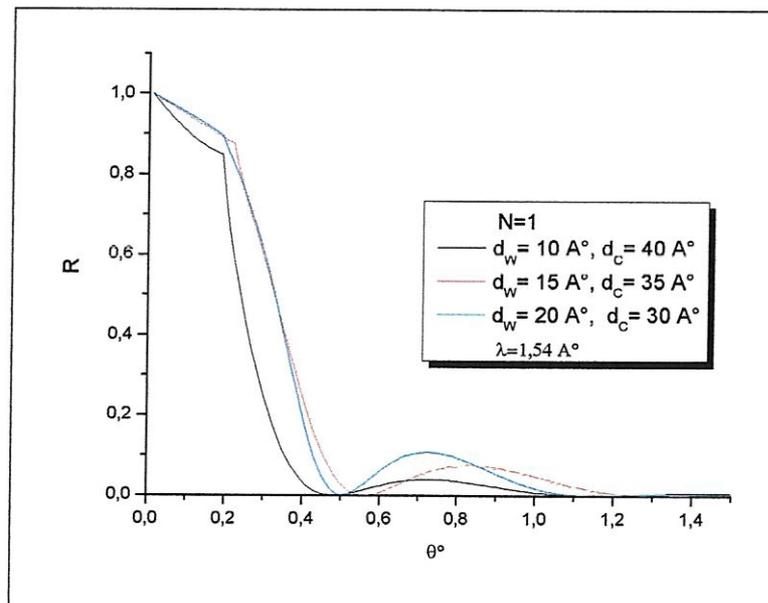
### 4.2.1. Effet des épaisseurs des couches minces

Les propriétés d'une couche mince dépendent de son épaisseur; l'absorption d'un rayonnement pour une couche mince dans le domaine des rayons X dépend de sa longueur d'onde, de la densité de la couche et de son épaisseur.

Pour voir l'effet des épaisseurs des couches sur les courbes de réflexion simulées, nous avons représenté sur la figure IV-4 trois courbes de réflexion du matériau W/C (une seule période) simulées en variant les épaisseurs ' $d_w$ ' et ' $d_c$ ' des couches de (W) et (C) respectivement tout en maintenant l'épaisseur ' $d$ ' de la période constante ( $d = d_w + d_c = 50 \text{ A}^\circ$ ). Nous rappelons que la

longueur d'onde du rayonnement est  $\lambda=1.54 \text{ \AA}$  et que les valeurs de  $\delta$  et  $\beta$  des deux couches minces sont :  $\delta_W = 4.628 \cdot 10^{-5}$ ,  $\delta_C = 7.03 \cdot 10^{-6}$ ,  $\beta_W = 3.856 \cdot 10^{-6}$ ,  $\beta_C = 1.115 \cdot 10^{-8}$ .

L'évolution des courbes de réflexion de W/C en fonction des épaisseurs des couches de (W) et de (C) est spéculaire ; en effet, pour  $\theta < 0.5^\circ$  l'allure des courbes est préservée mais avec un changement d'amplitude tandis que pour  $\theta > 0.5^\circ$ , le pic observé subit un changement affectant son intensité et la position de son centre.



*Figure IV-4: Effet des épaisseurs ( $d_w$ ) et ( $d_c$ ) sur les spectres de réflexion calculés de W/C dans le domaine des angles rasants.*

Pour le système W/C, la meilleure intensité du pic est obtenue pour les valeurs des épaisseurs suivantes :  $d_w=20 \text{ \AA}$ ,  $d_c=30 \text{ \AA}$ .

#### 4.2.2. Effet du nombre de périodes (N)

Le nombre de périodes (N) constituant la multicouche est un paramètre de grande importance ; son effet est observé sur l'intensité de la réflexion et particulièrement l'intensité du pic. Pour mettre en évidence l'effet de la taille de la multicouche sur les courbes de réflexion simulées, nous avons effectué les calculs en variant le nombre de périodes entre 1 et 35 et en utilisant le rayonnement  $k_\alpha$  du Cuivre de longueur d'onde  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ . Nous rappelons que la période est formée de deux couches (Tungstène et Carbone) d'épaisseurs  $d_w = 20 \text{ \AA}$  et  $d_c = 30 \text{ \AA}$ .

Sur la figure 5 sont illustrées les courbes de réflexion calculées en variant (N) de 1 à 35 périodes, entre  $0.6^\circ$  et  $1^\circ$ . Nous constatons une élévation de l'intensité du pic, centré à environ  $0.79^\circ$ , au fur et à mesure que (N) augmente tandis que la position de son centre reste inchangée. Nous avons rapporté dans le tableau 1, les intensités relatives des pics en prenant l'intensité la plus grande (N = 35) égale à 100 % ; au delà de 35 périodes, l'intensité reste constante. ( Pour N =35, Intensité = 84.1 %  $\equiv$  100 %).

Tableau IV-1: Intensités relatives du pic de réflexion, en fonction du nombre de périodes.

Nombre de périodes N	Intensité du pic du système (W/C) %
1	12.7
17	80.31
25	83.44
35	84.14

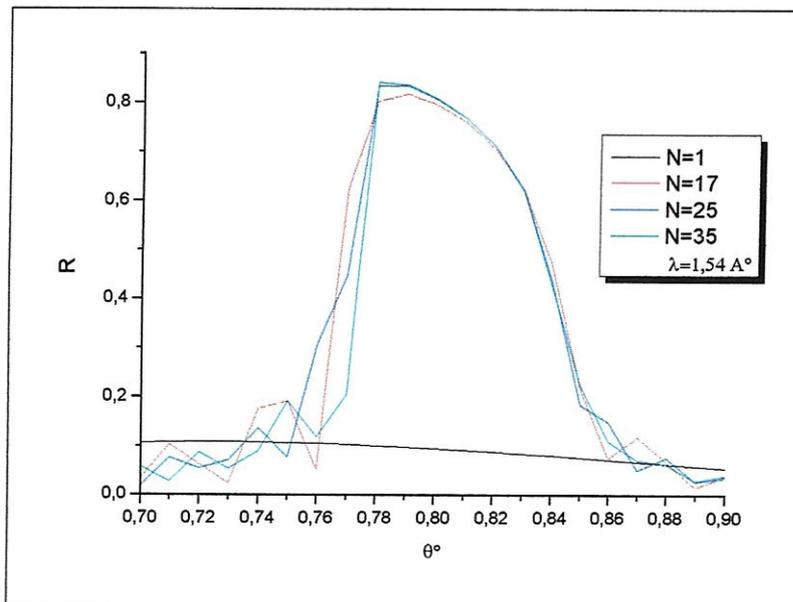


Figure IV-5 : Effet de nombre de périodes sur l'intensité du pic de réflexion (W/C) dans le domaine des angles rasants.

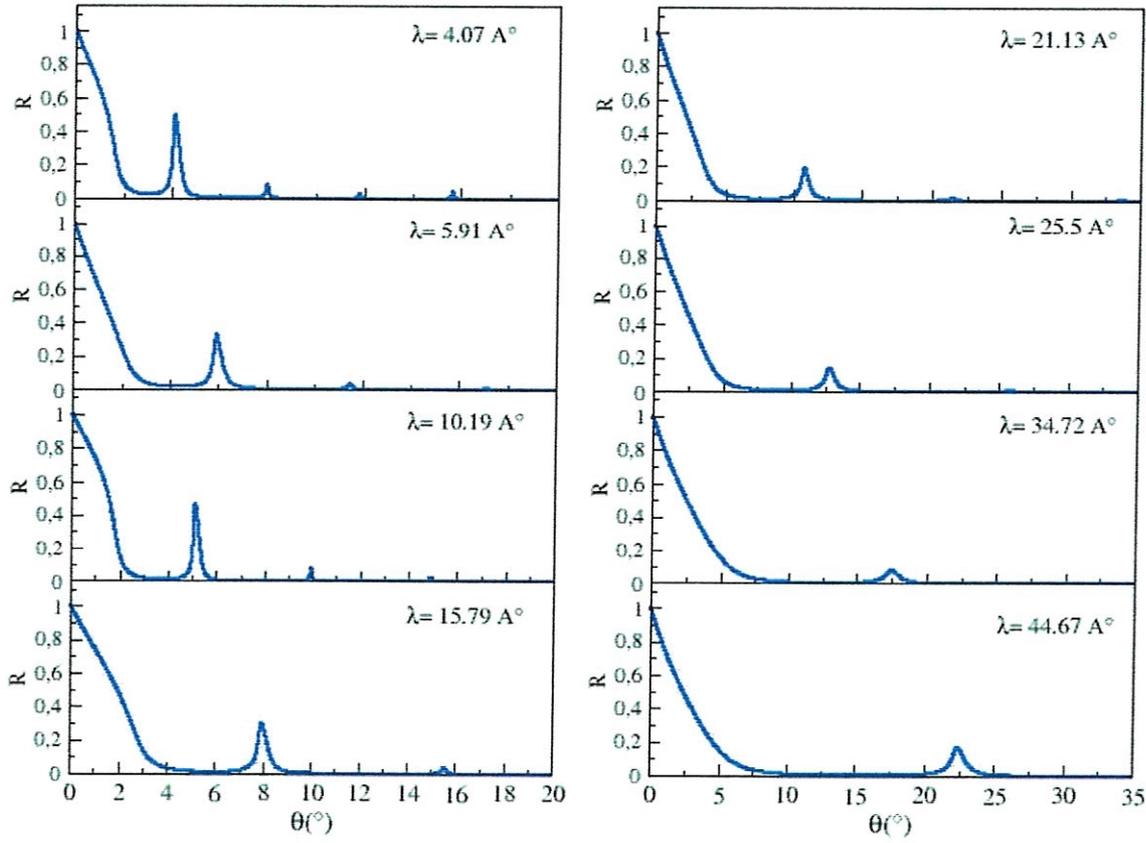
### 4.2.3. Evolution des courbes de réflexion avec la longueur d'onde du rayonnement

Pour avoir une idée sur l'évolution des courbes de réflexion des systèmes multicouches en fonction de la longueur d'onde ( $\lambda$ ), nous avons choisi comme exemple le matériau W/C constitué de 35 périodes où chaque période est formée de deux couches de (W) et de (C) d'épaisseurs respectives  $d_w = 20 \text{ \AA}$  et  $d_c = 30 \text{ \AA}$ . Les courbes de réflexion sont simulées (figure IV-6) en fonction de ( $\lambda$ ) (voir tableau IV-2). La courbe initiale, calculée pour  $\lambda = 4.07 \text{ \AA}$ , montre quatre pics de réflexion aux alentours de  $2^\circ$ ,  $4^\circ$ ,  $\sim 6^\circ$  et  $\sim 8^\circ$ ; le plus intense est centré à  $2^\circ$ , vient ensuite le pic centré à  $4^\circ$  et enfin les deux restants ( $\sim 6^\circ$ ,  $\sim 8^\circ$ ), ont des intensités négligeables. L'augmentation de ( $\lambda$ ) est suivie par un changement de l'aspect des courbes de réflexion; nous avons noté la disparition de deux pics observés aux grands angles et un déplacement vers les grands des deux pics centrés au départ ( $\lambda = 4.07 \text{ \AA}$ ) à  $2^\circ$  et  $4^\circ$ .

Pour  $\lambda = 21.13 \text{ \AA}$ , le deuxième pic a disparu et il ne reste qu'un seul d'intensité plus faible comparée à celles observées pour  $\lambda = 4.07, 5.91, 9.31$  et  $10.19 \text{ \AA}$ ; la position du centre de ce pic continue à se déplacer vers les grandes angles et quand  $\lambda = 44.67 \text{ \AA}$ , il se trouve à  $22.3^\circ$  avec une intensité de 17.1%. Ce rayonnement ( $\lambda = 44.67 \text{ \AA}$ ) est souvent utilisé lorsqu'il s'agit du matériau W/C parce que sa courbe de réflexion contient un seul pic d'intensité appréciable ( $\sim 17\%$ ), loin de la réflexion totale.

**Tableau IV-2:** Intensités et positions du pic de réflexion de W/C en fonction de ( $\lambda$ ).

Longueur d'onde $\lambda(\text{A}^\circ)$	Intensité du 1 <sup>er</sup> pic (%)	Position du 1 <sup>er</sup> pic ( $\theta^\circ$ )
4.07	49.86	2.0
5.91	33.02	2.9
9.31	49.54	4.6
10.19	46.66	5.1
21.13	18.93	10.8
30.05	10.08	15.1
34.72	7.63	17.5
44.7	17.10	22.3



*Figure IV-6 : Courbes de réflexion de W/C en fonction de ( $\lambda$ ) pour  $N=35$ .*

Nous avons fait le même travail pour le matériau W/Si. Les simulations sont faites dans les conditions suivantes :  $N = 37$  périodes,  $d_w = 20 \text{ \AA}$  et  $d_{Si} = 30 \text{ \AA}$ . Les courbes de réflexion de W/Si, calculées dans les conditions sus citées entre  $0^\circ$  et  $32^\circ$ , en variant ( $\lambda$ ) sont illustrées sur la figure IV-7 (Les valeurs de  $\lambda$  sont rapportées dans le tableau3). Toutes les courbes montrent un seul pic de réflexion centré à  $2.54^\circ$  pour  $\lambda=4.07 \text{ \AA}$ , d'intensité égale à 37.9% ; il se déplace vers les grandes valeurs de  $\theta$  (angle d'incidence) et son intensité décroît quand ( $\lambda$ ) croît.

Pour  $\lambda= 44.67 \text{ \AA}$ , la position du centre du pic est à  $\theta=29.1^\circ$  et son intensité est faible, de l'ordre de 3.3%. Donc, loin de la réflexion totale, ce matériau (W/Si) ne peut pas être utilisé comme miroir de Bragg dans le domaine de rayons X à cause de sa faible réflexion.

Tableau IV- 3 : Intensités et positions du premier pic de réflexion de W/Si pour différentes valeurs de ( $\lambda$ ).

Longueur d'onde $\lambda$ (A°)	Intensité du 1 <sup>er</sup> pic (%)	Position du 1 <sup>er</sup> pic ( $\theta^\circ$ )
4.07	37.9	2.54
5.91	21.84	3.65
10.19	43	6.3
13.5	31.64	8.65
21.13	17.55	13.14
25.5	12.77	15.92
34.72	6.7	21.9
44.7	3.3	29.1

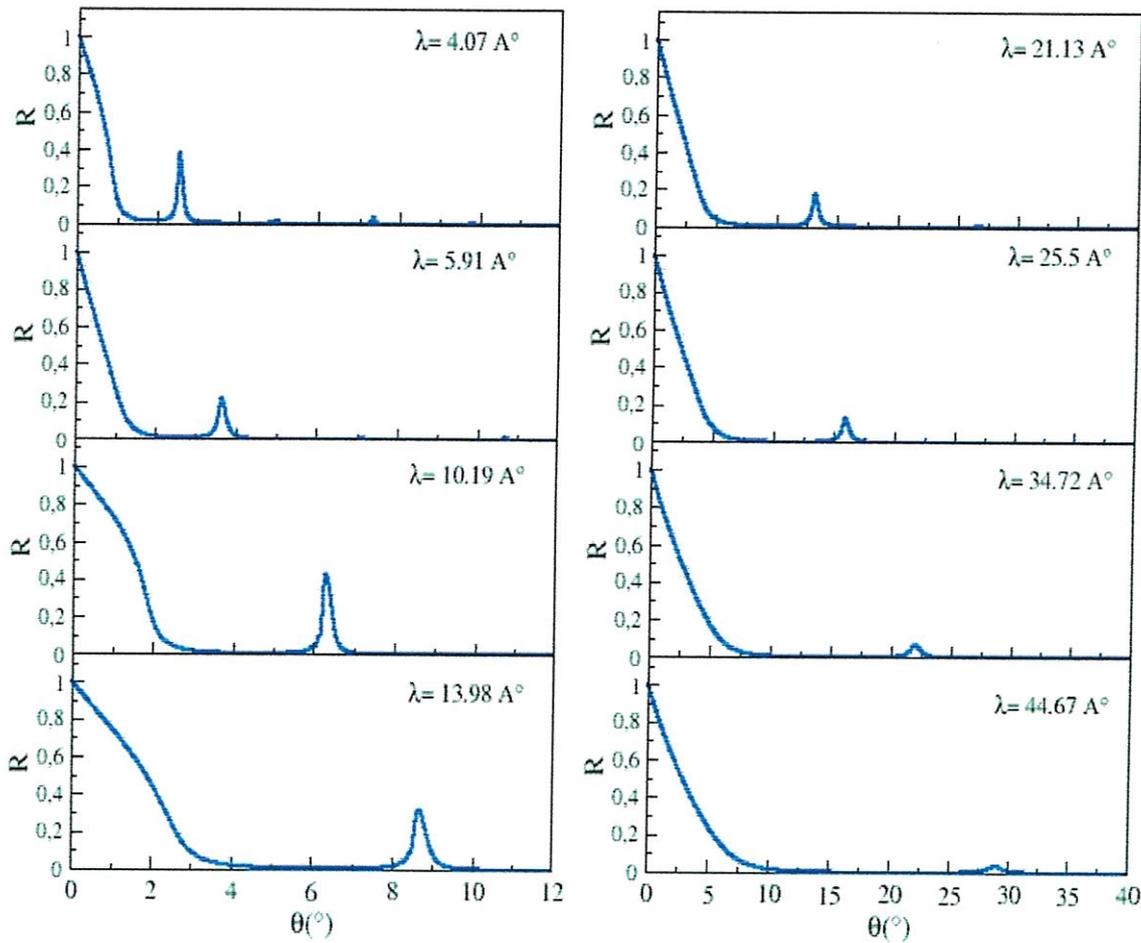
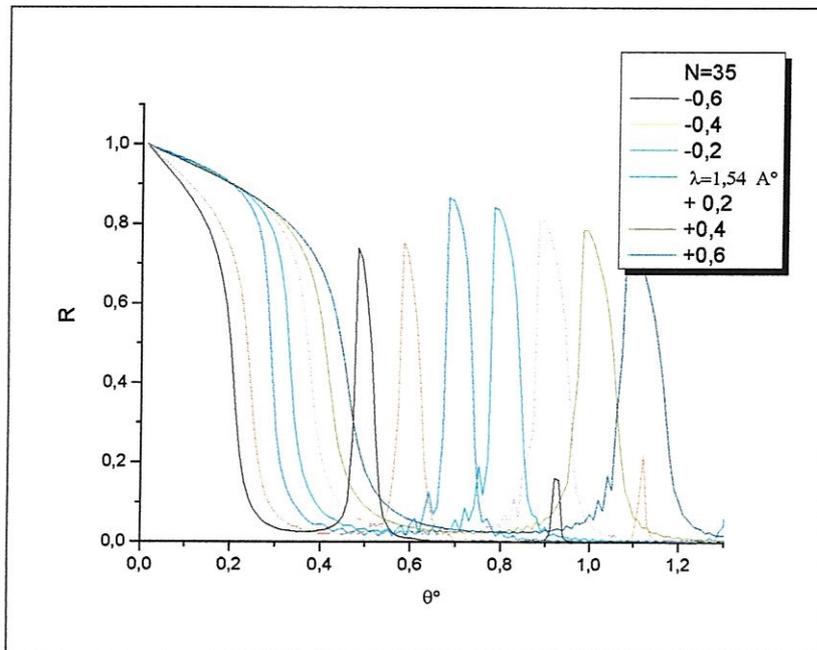


Figure IV- 7 : Courbes de réflexion de W/Si en fonction de ( $\lambda$ ) pour  $N=37$ .

#### 4.2.4. Effet d'une légère variation de la longueur d'onde sur le pic de réflexion

Nous avons essayé de voir l'effet d'une petite variation de la longueur d'onde ( $\lambda$ ) du rayonnement sur les spectres de réflexion simulés. Pour ce faire, nous avons choisi le système (W/C) composé de 35 périodes et nous avons calculé ses courbes de réflexion en variant ( $\lambda$ ) autour de  $1.54 \text{ \AA}$  avec un pas de 0.2. Les courbes de réflexion obtenues dans ces conditions sont représentées sur la figure IV-8. La variation de ( $\lambda$ ), tel que observé sur les courbes de réflexion, a un effet sur l'intensité du pic et sur sa position ; en effet quand  $\lambda$  varie entre  $\lambda_{\min}$  et  $1.54 \text{ \AA}$ , le pic est déplacé vers les grands angles et son intensité augmente, quand  $\lambda$  varie entre  $1.54 \text{ \AA}$  et  $\lambda_{\max}$ , le pic continue à se déplacer vers les grands angles mais son intensité diminue.



*Figure IV-8 : Courbes de réflexion de (W/C) calculées pour  $\lambda = (1.54 \pm \Delta\lambda) \text{ \AA}$ ,  $\Delta\lambda = 0.2 \text{ \AA}$ ,  $0.4 \text{ \AA}$  et  $0.6 \text{ \AA}$*

Les deux effets observés sur les courbes de réflexion de W/C, liés à la variation de ( $\lambda$ ), sont illustrés sur les figures IV-9 et IV-10. La figure IV-9 montre la variation de l'intensité du pic avec  $\lambda$  ; cette dernière augmente entre  $\lambda_{\min}$  et  $1.34 \text{ \AA}$ , et diminue ensuite linéairement entre  $1.34 \text{ \AA}$  et  $\lambda_{\max}$ . La figure IV-10 montre l'évolution de la position du pic avec  $\lambda$  ; cette position se déplace vers les grands angles quand  $\lambda$  croît.

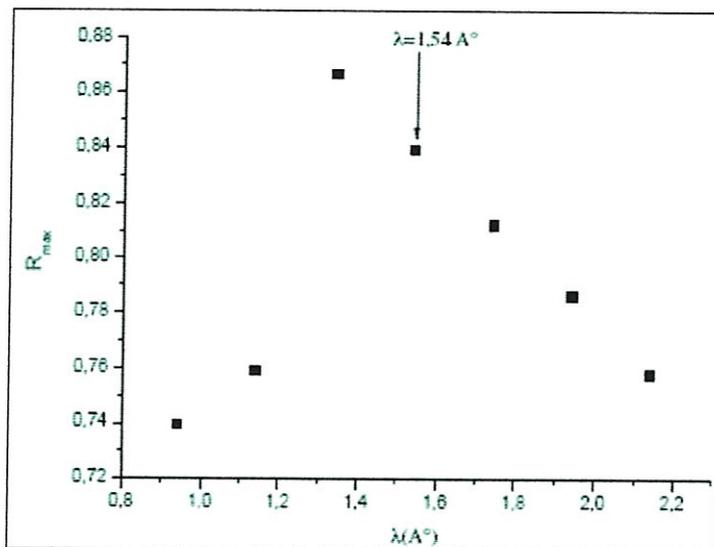


Figure IV-9: Variation de l'intensité du pic de réflexion de (W/C) pour  $\lambda = (1.54 \pm \Delta\lambda) A^\circ$ ,  $\Delta\lambda = 0.2 A^\circ, 0.4 A^\circ$  et  $0.6A^\circ$

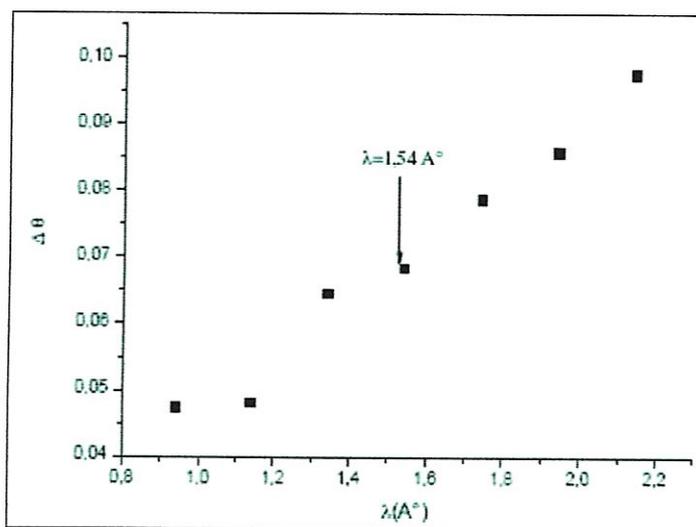


Figure IV-10 : Variation de la position du pic de W/C avec  $\lambda=(1.54 \pm \Delta\lambda) A^\circ$ ,  $\Delta\lambda = 0.2 A^\circ, 0.4 A^\circ$  et  $0.6A^\circ$

### 4.3. Effet de la rugosité sur le spectre de réflexion

Dans les conditions de simulations que nous avons effectuées jusqu'à maintenant, nous avons toujours supposé une surface idéale plane ne présentant pas d'anomalies (rugosités). Dans la pratique, on ne peut pas réaliser des systèmes aussi parfaits ; toutes les techniques d'élaboration (pulvérisation, évaporation, CVD, épitaxie, etc....) ont montré que les multicouches présentent des surfaces rugueuses et que l'importance de la rugosité dépend à la fois du matériau lui-même (sa nature) et aussi de la technique avec laquelle il est élaboré. Pour mettre en évidence l'effet de la rugosité sur la réflexion des multicouches, nous avons modélisé la surface en prenant une rugosité de profil gaussien (voir annexe 5).

Nous rappelons que le profil peut être autre qu'une gaussienne (Lorentzienne, sinusoïdale, etc....) et que dans notre cas, la simulation est effectuée en prenant une taille pour la rugosité ( $\sigma$ ) de même ordre de grandeur que la longueur d'onde du rayonnement ( $\lambda$ ). Pour illustrer l'effet de la rugosité de surface sur l'intensité réfléchie par une multicouche, nous avons choisi le matériau (W/C) à 35 périodes et nous avons étudié le phénomène sur le pic de réflexion ( $\theta = 0.8^\circ$ ). Sur la figure IV-11, sont représentées les courbes de réflexion de (W/C) entre  $0.4^\circ$  et  $1.2^\circ$  pour différentes valeurs de ( $\sigma$ ), paramètre désignant la taille moyenne de la rugosité de surface. Nous avons constaté que la valeur de ( $\sigma$ ) avait un effet sur l'intensité du pic ( $\theta = 0.8^\circ$ ) où, en effet, l'augmentation de ( $\sigma$ ) entraîne une diminution de l'intensité du pic. Pour la multicouche idéale ( $\sigma = 0$ ), l'intensité du pic est la plus élevée (84%). Au fur et à mesure que ( $\sigma$ ) augmente, l'intensité du pic diminue et atteint 58.9% pour  $\sigma = 10 \text{ \AA}$ , valeur maximale de ( $\sigma$ ) dans notre cas. Nous avons constaté que l'intensité du pic est affectée par la valeur de ( $\sigma$ ) mais le profil des courbes de réflexion est préservé surtout de part et d'autre  $\theta = 0.8^\circ$ .

Nous avons fait le même travail sur la multicouche W/Si. Les remarques et les commentaires faites sur la figure IV-11 sont aussi valables pour la figure IV-12 sauf que l'intensité du pic à  $1^\circ$  baisse considérablement avec  $\sigma$  ( $\sigma = 0.2, 4.2, 8$  et  $10 \text{ \AA}$ ). En effet pour  $\sigma = 0$ , l'intensité du pic est 79.5% ; elle passe à 20% pour  $\sigma = 10 \text{ \AA}$ .

Pour mieux montrer ces différences, nous avons rapporté dans le tableau IV-4 les intensités du pic pour les deux systèmes (W/C) et (W/Si) en fonction de ( $\sigma$ ).

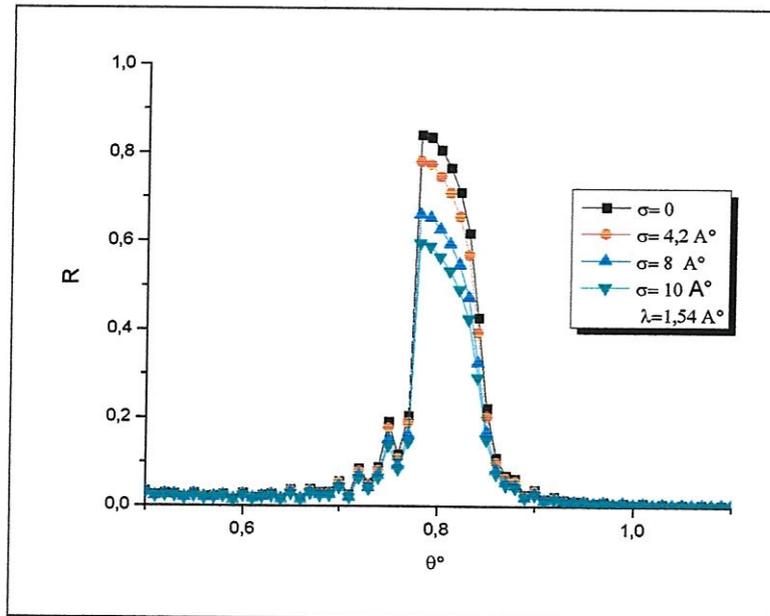


Figure IV-11: Effet de la rugosité sur les courbes calculées de la réflexion de (W/C).

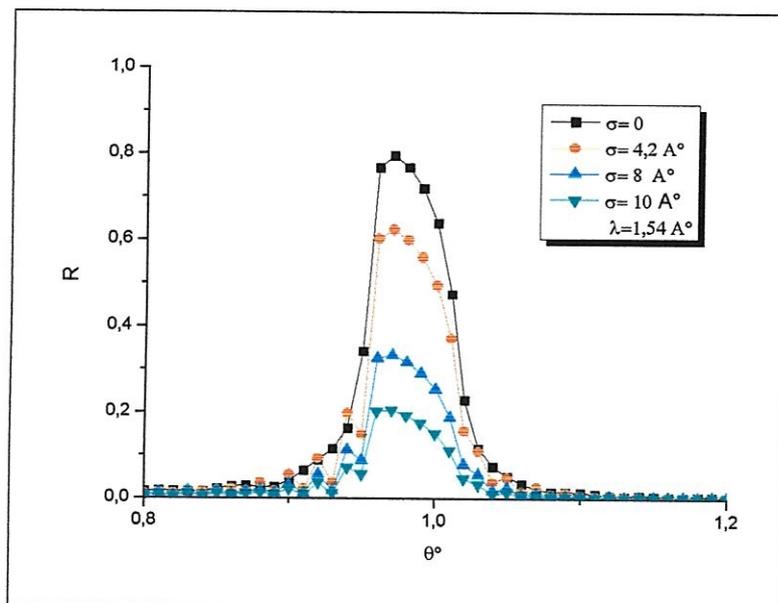


Figure IV-12 : Effet de la rugosité sur les courbes calculées de la réflexion de (W/Si).

Tableau IV-4: Intensité du pic de réflexion dans W/C et W/Si en fonction de ( $\sigma$ ).

Taille de la rugosité $\sigma$ ( $\text{A}^\circ$ )	Intensité du pic de (W/C) en %	Intensité du pic de (W/Si) en %
0	84.1	79.5
0.2	66.13	79.1
4.2	78.15	75.96
8	66.13	68.48
10	58.90	20

#### 4.4 Simulation des courbes de réflexion des multicouches présentant un intérêt dans le domaine des rayons X

Comme nous l'avons spécifié, plusieurs matériaux sont absorbants dans le domaine des rayons X. On sait maintenant qu'un matériau absorbant en couche mince peut avoir une réflectivité importante en présence d'un deuxième matériau relativement moins absorbant. Le deuxième critère est le choix d'un matériau absorbant mais dont l'absorption ne doit pas être trop élevée et le troisième critère concerne les indices de réfraction des matériaux formant la multicouche, qui doivent être différents. Nous avons choisi quelques matériaux vérifiant les critères que nous venons d'évoquer et nous avons calculé ensuite leurs spectres de réflexion théoriques.

##### 4.4.1. Multicouche présentant un pic de réflexion aux petits et aux grands angles

Le tableau 4 contient les longueurs d'onde des raies caractéristiques de quelques matériaux que nous avons utilisés dans la simulation de miroirs de Bragg.

*Tableau IV-5 : Longueurs d'onde des raies caractéristiques de quelques matériaux*

matériaux	Longueur d'onde ( $\lambda$ ) de la raie caractéristique		
	$\lambda_{K\alpha 1}$ (Å°)	$\lambda_{K\alpha 2}$ (Å°)	$\lambda_{K\beta}$ (Å°)
Cu	1.54060	1.54439	1.39222
Cr	2.28970	2.29361	2.08487
Fe	1.93604	1.93998	1.62079
Mo	0.70930	0.71359	0.63229

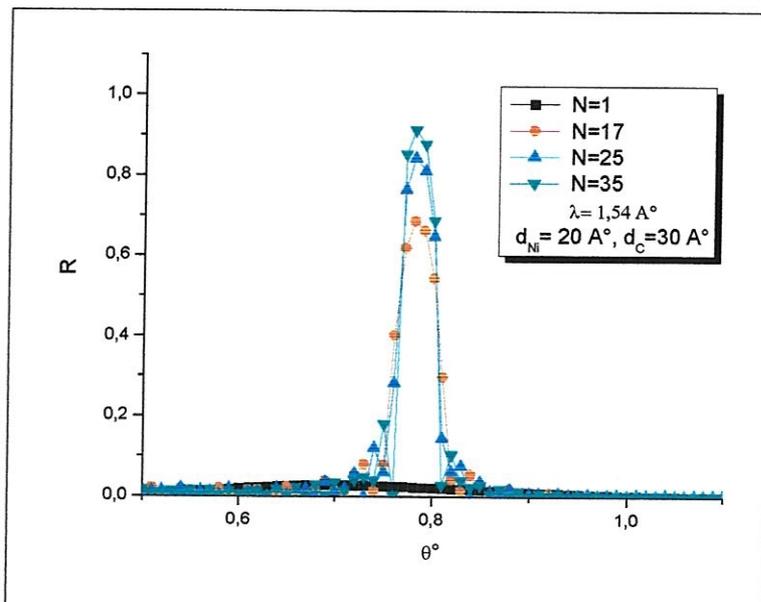
Dans ce qui suit, nous présenterons les résultats de calculs de quelques systèmes multicouches que nous avons étudiées.

## a) Système Ni/C

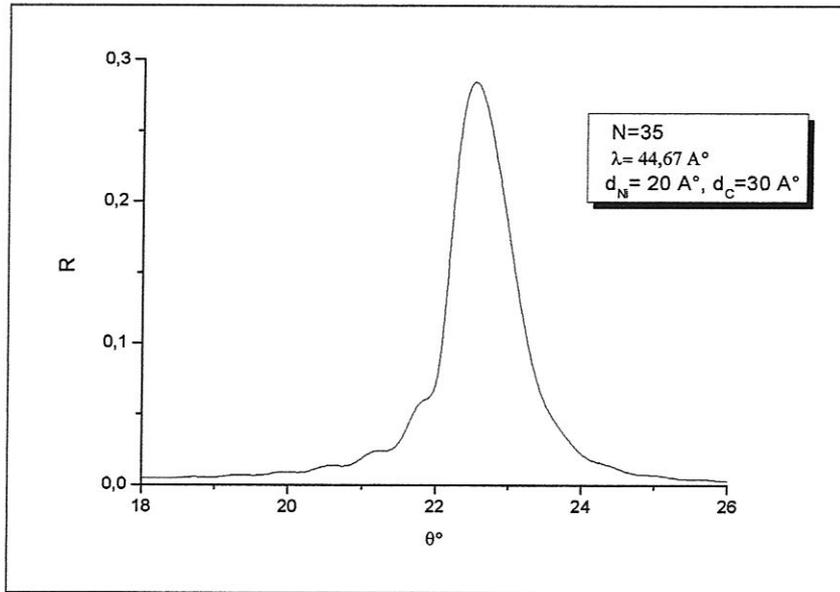
Le nickel est un métal gris argent, dur mais malléable ( $3d^8 4s^2$ ). Dans les conditions habituelles, il ne réagit pas avec l'air humide ; il est choisi pour sa résistance à la corrosion et pour son coût (prix du nickel pur à 99.99 % : 97 € pour 500g).

Les courbes de réflexion du système Ni/C sont calculées dans les mêmes conditions que pour le système W/C en prenant les épaisseurs des couches de (Ni) et de (C) respectivement égales à  $d_{Ni} = 20 \text{ \AA}$  et  $d_C = 30 \text{ \AA}$  et la longueur d'onde du rayonnement  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$  (voir figure IV-13) ; nous les avons représentées dans le domaine des faibles incidences entre  $0$  et  $1^\circ$  en variant le nombre de périodes de la multicouche de 1 à 35. Un pic autour de l'incidence  $\theta = 0.8^\circ$  est observé, son intensité est sensible à la taille de la multicouche et elle est d'autant plus importante que le nombre de périodes est grand. Pour  $N = 1$ , l'intensité du pic est très faible, elle commence à s'améliorer à partir de  $N = 17$  et atteint le maximum pour  $N = 35$  (89.69%).

Ce même matériau (Ni/C) présente des caractéristiques intéressantes aux grandes incidences ; nous avons calculé sa courbe de réflexion pour  $N = 35$  en utilisant un rayonnement de longueur d'onde  $\lambda = 44.67 \text{ \AA}$  et nous l'avons enregistrée entre  $16^\circ$  et  $26^\circ$  (figure IV-14) . Le pic de réflexion est centré à  $\theta = 22.5^\circ$  et son intensité est égale à 28.43 %. Nous pouvons donc qualifier le matériau Ni/C, à cause de ses caractéristiques, d'intéressant du point de vue application, tant que miroir de Bragg dans le domaine d'énergie des rayons X.



*Figure IV-13: Courbes de réflexion calculées de Ni/C en fonction de (N) dans le domaine des angles rasants.*



*Figure IV-14 : Courbes de réflexion calculées de Ni/C dans le domaine des grands angles.*

#### b) Système Pt/C

Les paramètres de la multicouche (Pt/C), optimisés pour un meilleur rendement de son pouvoir de réflecteur ont été fixés. L'épaisseur totale de la période est  $58 \text{ \AA}$ , les épaisseurs des couches minces (Pt) et (C) sont respectivement  $d_{\text{Pt}} = 25 \text{ \AA}$  et  $d_{\text{C}} = 33 \text{ \AA}$ , le nombre de périodes maximal est  $N = 48$  et le rayonnement utilisé à une longueur d'onde  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ .

Dans les conditions sus mentionnées, dans le domaine des incidences rasantes, la courbe de réflexion calculée entre  $0^\circ$  et  $2^\circ$  (figure IV-15) a montré trois pics de réflexion d'intensités différentes ; l'intensité du premier pic ( $0.7^\circ$ ) est égale à 80.88 %, celle du deuxième ( $\sim 1.3^\circ$ ) est égale à 24% et en fin celle du troisième ( $\sim 1.9^\circ$ ) est égale à 18%. Dans les mêmes conditions, nous avons calculé la courbe de réflexion de (Pt/C) entre  $16^\circ$  et  $24^\circ$  en utilisant le rayonnement  $\lambda = 44.67 \text{ \AA}$  (figure IV-16). La courbe montre un pic situé entre  $20^\circ$  et  $21^\circ$  d'intensité approximativement égale 1 %.

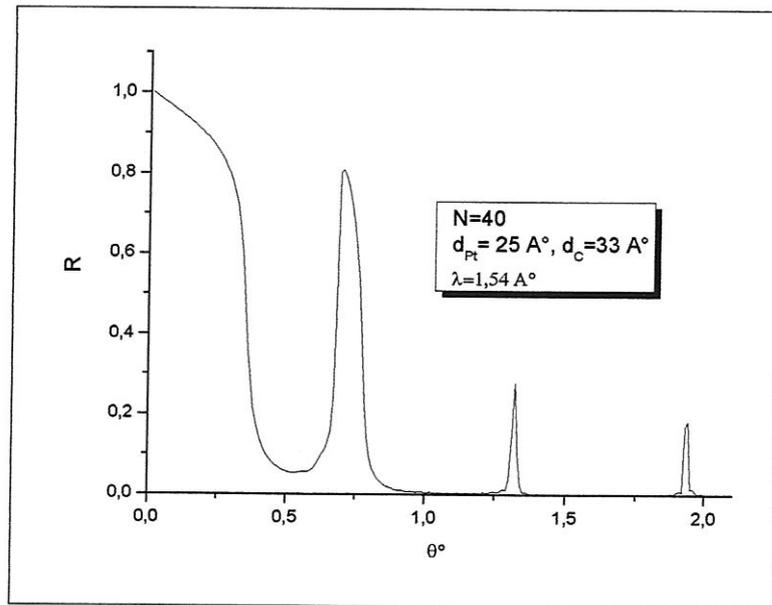


Figure IV-15 : Courbe de réflexion calculée de Pt/C dans le domaine des angles rasants.

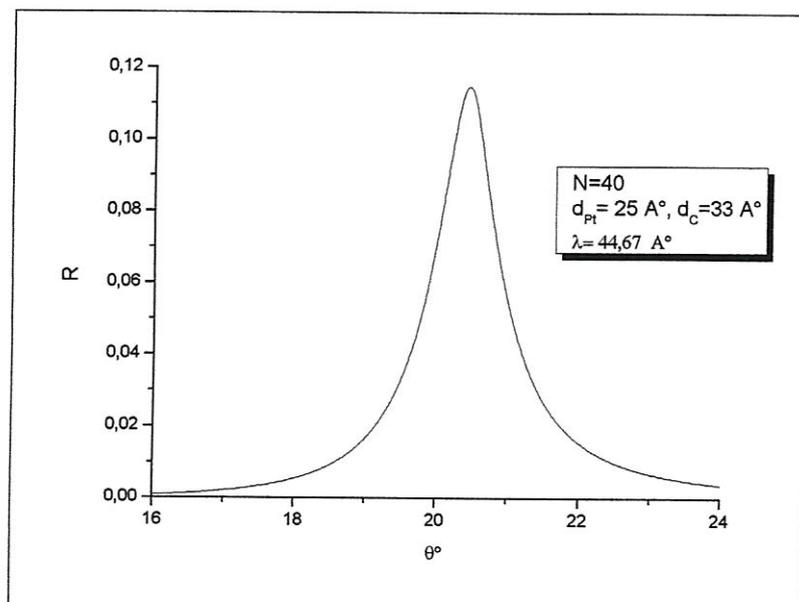


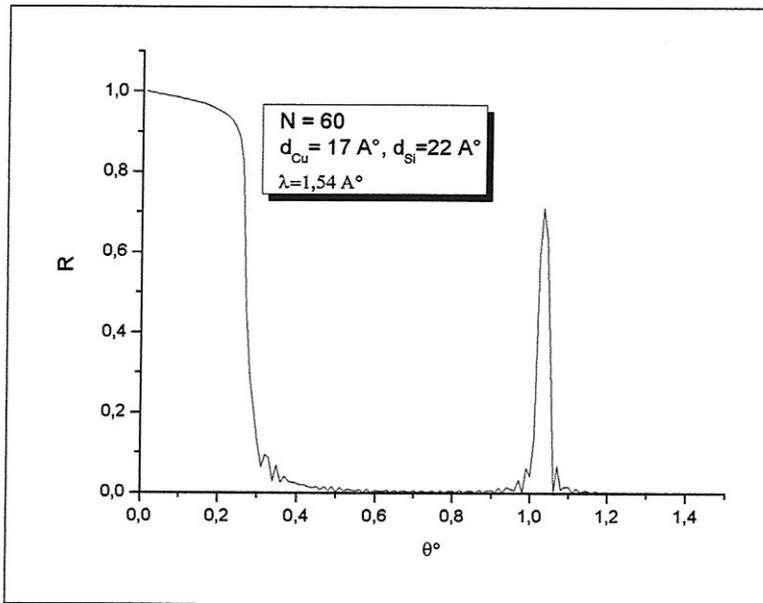
Figure IV-16 : Courbe de réflexion calculée de Pt/C dans le domaine des grands angles.

### c) Système Cu/Si

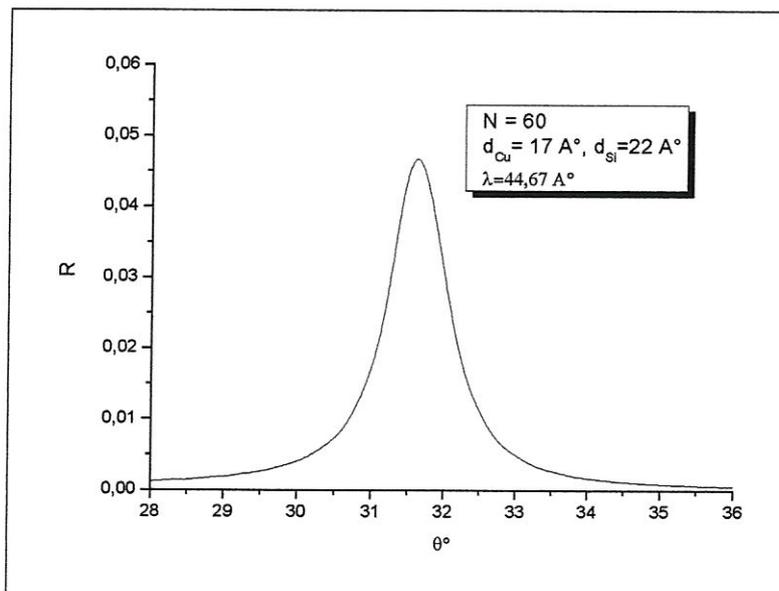
Les paramètres de la multicouche (Cu/Si) sont optimisés pour une épaisseur totale de la période égale à  $40 \text{ \AA}$ , pour les épaisseurs des couches minces de (Cu) et de (Si) égales respectivement à  $d_{\text{Cu}} = 17 \text{ \AA}$  et  $d_{\text{Si}} = 22 \text{ \AA}$  et pour un rayonnement de longueur d'onde  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ . La courbe de réflexion calculée de ce matériau, aux faibles incidences (entre  $0^\circ$  et  $1.8^\circ$ ), est donnée sur la

figure IV-17 pour  $N=37$  périodes. Le seul pic observé à  $\theta^\circ = 1^\circ$  a une intensité intéressante égale à 71.15% ; il est insensible à la valeur de ( $N$ ) au dessus de 37.

Nous avons aussi simulé la courbe de réflexion de ce matériau dans le domaine des grands angles avec le rayonnement  $\lambda = 44.67 \text{ \AA}$ . Un pic de réflexion à environ  $32^\circ$  est observé d'intensité faible de l'ordre de 5% (figure IV-18).



*Figure IV-17: Courbe de réflexion calculée de (Cu/Si) dans le domaine des angles rasants.*



*Figure IV-18: Courbe de réflexion calculée de (Cu/Si) dans le domaine des grands angles.*

## d) Système Si/C

Le contraste entre les indices optiques de ces deux matériaux (Si, C) à  $\lambda=1.54 \text{ \AA}$  n'est pas suffisamment grand comme c'est le cas pour les matériaux W/Si et Mo/Si. Les paramètres de la multicouche (Si/C) qui permettent d'optimiser sa courbe de réflexion sont : les épaisseurs des deux matériaux  $d_{\text{Si}} = 30 \text{ \AA}$  et  $d_{\text{C}} = 40 \text{ \AA}$ , l'épaisseur de la période, égale à  $70 \text{ \AA}$  et le nombre de périodes  $N=65$ .

Dans ces conditions, le calcul du spectre de réflexion est effectué :

- ✓ Pour  $\lambda=1.54 \text{ \AA}$  aucun pic d'intensité significative n'a été vu ; la courbe de réflexion montre un pic à  $0.57^\circ$  d'une très faible intensité  $\sim 2\%$  (figures IV-19).
- ✓ Pour  $\lambda = 44.67 \text{ \AA}$ , la courbe de réflexion est présentée entre  $14^\circ$  et  $18^\circ$  ; elle donne un pic d'intensité  $10.5 \%$  à  $\theta = 1.57^\circ$  (figure IV-20).

Donc dans le cas de la multicouche Si/C il est nécessaire de déposer un grand nombre de périodes pour que la multicouche jouera le rôle d'un miroir à grand pouvoir de réflexion dans le domaine des rayons X.

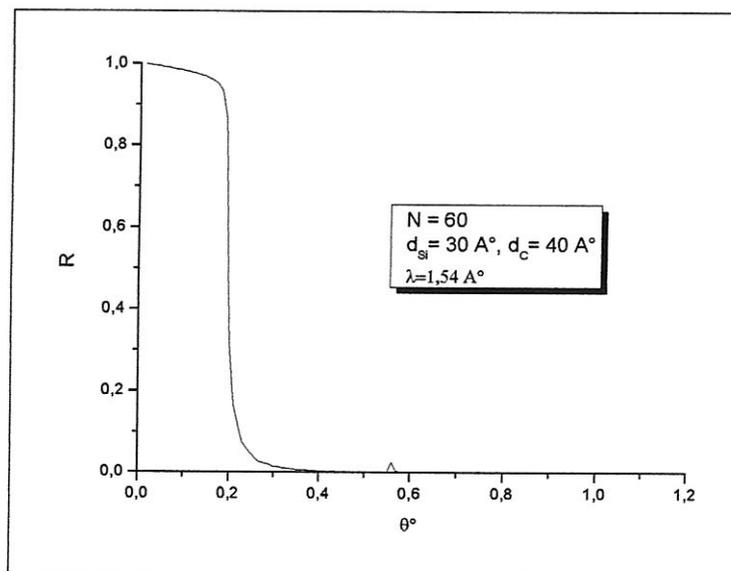


Figure IV-19: Courbe de réflexion calculée dans domaine des angles rasants.

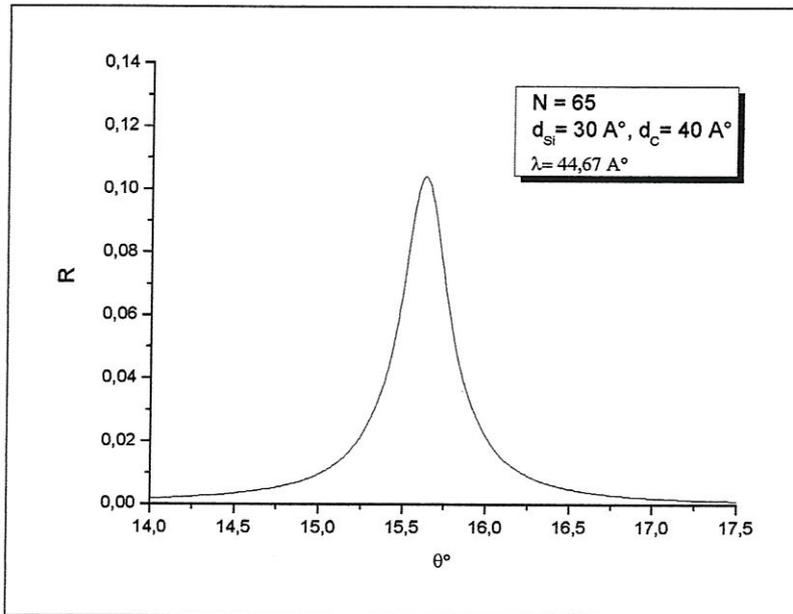


Figure IV-20 : Courbe de réflexion calculée dans le domaine des grands angles.

#### 4.4.2. Multicouche présentant un pic de réflexion aux petits angles

##### a) Système Mo/Si

Le calcul du spectre de réflexion de la multicouche (Mo/Si) est effectué après avoir fixé ses paramètres qui sont : l'épaisseur de la période égale à  $73 \text{ \AA}$ , les épaisseurs des couches minces (Mo et Si)  $d_{\text{Mo}} = 33 \text{ \AA}$  et  $d_{\text{Si}} = 40 \text{ \AA}$  et le nombre de périodes qui est égale à 47.

Pour  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ , le spectre de (Mo/Si) est calculé et présenté sur la figure IV-21. Trois pics sont relevés : à  $0.6^\circ$  d'intensité égale à 81 %, à  $1.1^\circ$  d'intensité relativement faible de l'ordre de 10% et en fin à  $1.6^\circ$  d'intensité égale à 6%.

##### b) Système Ta/Si

Le calcul du spectre de réflexion de la multicouche (Ti/Si) est effectué à partir des données suivantes : l'épaisseur de la période est égale à  $50 \text{ \AA}$ , les épaisseurs des deux matériaux sont :  $d_{\text{Ta}} = 20 \text{ \AA}$  et  $d_{\text{Si}} = 30 \text{ \AA}$ , le nombre de périodes égale à 34 et  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$  (figure IV-22). Nous avons simulé les courbes de réflexion de (Ta/Si) avec les données optimisées de la multicouche dans le domaine des incidences rasantes entre 0 et  $1.6^\circ$ ; dans ce cas, deux pics de réflexion sont observés le premier autour de  $0.8^\circ$  d'intensité égale à 80 % et le deuxième pic est repéré à  $1.5^\circ$  d'intensité égale à ~22%.

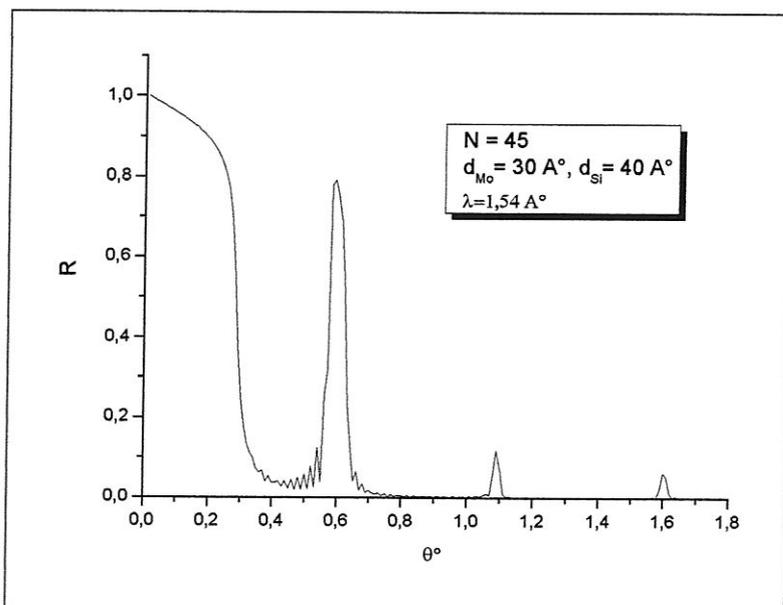


Figure IV-21: Courbe de réflexion calculée de (Mo/Si) dans le domaine des angles rasants.

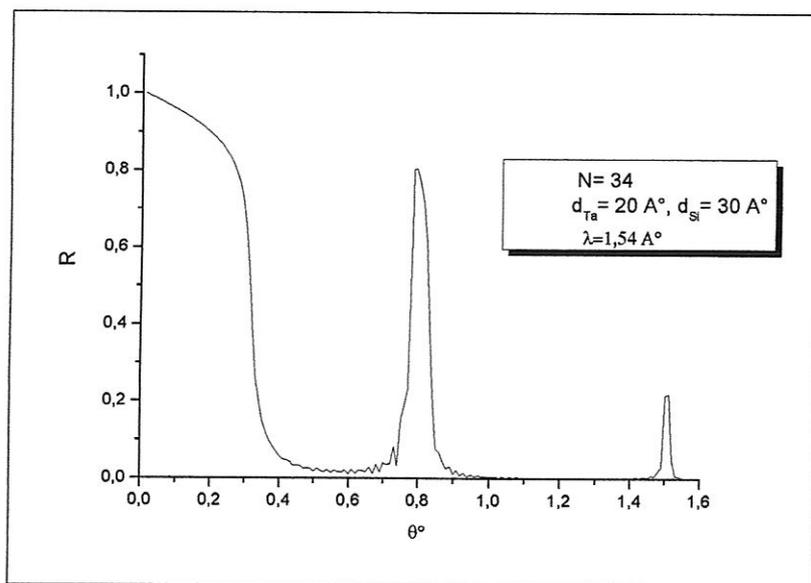
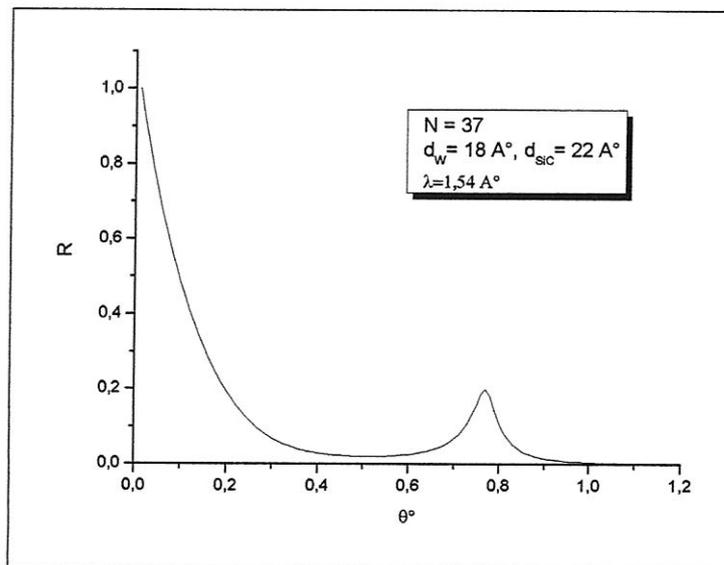


Figure IV-22: Courbe de réflexion calculée de (Ta/Si) dans le domaine des angles rasants.

### c) Système W/SiC

Nous avons simulé les courbes de réflexion de la multicouche (W/SiC). Ce matériau, est semblable à (W/Si) sauf que la couche de Si est remplacée par le carbure de Silicium (SiC). La simulation est faite dans les conditions suivantes :  $d_w = 18 \text{ \AA}$  et  $d_{SiC} = 22 \text{ \AA}$ ,  $N = 37$  et  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ . La courbe de réflexion calculée entre 0 et  $1.2^\circ$  est représentée sur la figure IV-23. Un pic est relevé à  $\sim 0.95^\circ$ , son intensité est faible de l'ordre de 20 %. Nous remarquons que ce matériau, comparé à W/Si (figure IV-12) dans le domaine des angles rasants, possède des caractéristiques moins intéressantes. Le changement de (Si) par (SiC) fait varier les constantes optiques de ce système, ce qui conduirait à des valeurs de réflectivité moins grandes.



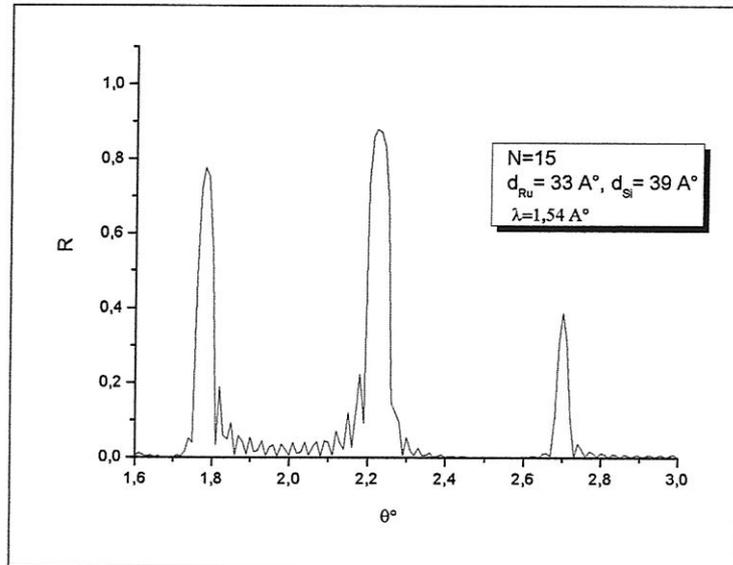
*Figure IV-23 : Courbe de réflexion calculée de (W/SiC) dans le domaine des angles rasants.*

### d) Système Ru/Si

Le ruthénium est un métal gris blanc, rare ( $4d^7 5s^1$ ), très cassant. Il ne réagit pas avec l'air, l'eau et les acides. Il est utilisé pour augmenter la dureté du platine et du palladium (le prix du Ru pur à 99.95 % : 785 € pour 50g). La différence entre les indices de réfraction de (Ru) et (Si) est respectée. Dans ce cas, nous avons simulé les courbes de réflexion de (Ru/Si) dans les conditions suivantes : l'épaisseur de la période est égale à  $72 \text{ \AA}$ , les épaisseurs des deux matériaux  $d_{Ru} = 33 \text{ \AA}$  et  $d_{Si} = 39 \text{ \AA}$  et  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ ; la courbe de réflexion est présentée sur la

figures 24. Nous avons relevé trois pics de réflexion d'intensités différentes ; le premier (78 %) se trouve à  $\theta = 1.78^\circ$ , le deuxième (87.9 %) à  $\theta = 2.2^\circ$  et le troisième (39 %) à  $\theta = 2.7^\circ$ .

Au-delà de 15 périodes, l'intensité du spectre reste inchangée.



*Figure IV-24: Courbe de réflexion calculée de (Ru/Si) dans le domaine des angles rasants.*

#### e) Système Mo/B<sub>4</sub>C

Le carbure de Bore est l'un des matériaux utilisé dans la fabrication des miroirs à grand pouvoir de réflexion dans le domaine des grandes et petites valeurs de ( $\lambda$ ). Le calcul de la courbe de réflexion de la multicouche (Mo/B<sub>4</sub>C) est fait dans les conditions suivantes :  $N=40$ ,  $d_{\text{Mo}}=34 \text{ \AA}$  et  $d_{\text{B}_4\text{C}}=51 \text{ \AA}$  et  $\lambda=1.54 \text{ \AA}$ . Quatre pics sont relevés d'intensités différentes : le premier pic (le plus intense : 85.7%) se trouve à  $0.51^\circ$  ; son intensité est reste constante même si ( $N$ ) est supérieure à 40 périodes. Le deuxième pic se trouve à  $0.9^\circ$ , son intensité est égale à 52% ; le troisième pic est le plus faible ( $1.38^\circ$ ), d'intensité  $\sim 4\%$  et en fin, l'intensité du quatrième pic ( $1.78^\circ$ ) est égale à 10%. En conclusion, on peut dire que sur le plan théorique, le système (Mo/B<sub>4</sub>C) peut servir comme miroir de Bragg dans le domaine des rayons X.

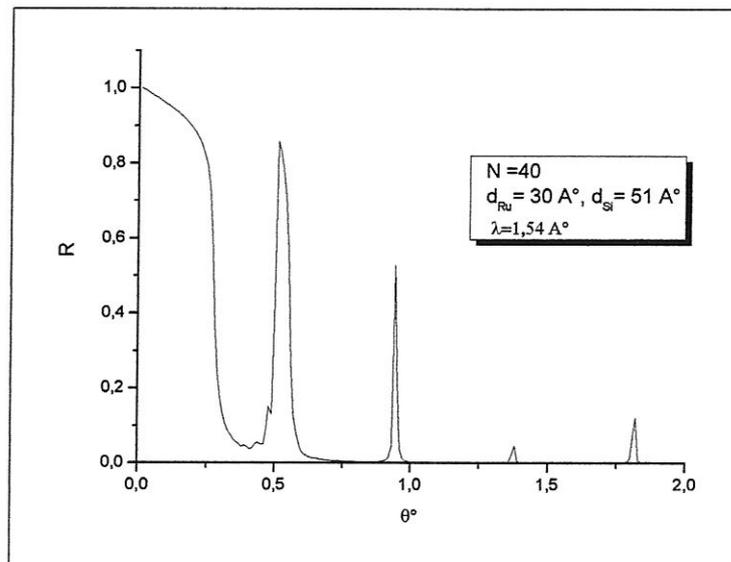


Figure IV-25: Courbe de réflexion calculée de (Mo/B<sub>4</sub>C) dans le domaine des angles rasants.

#### f) Autres systèmes :

Nous avons, jusqu'à maintenant, simulé des courbes de réflexion pour des systèmes multicouches et nous avons, cherché à optimiser leur intensité réfléchie en choisissant judicieusement les épaisseurs des deux matériaux de la période et le nombre maximum de périodes de la multicouche qu'il faut mettre au-delà duquel, l'intensité du pic de réflexion reste constante. Dans le tableau 6, nous avons rapporté, pour quelques systèmes (multicouches), les caractéristiques de leurs pics de réflexion relevés sur leurs courbes de réflexion, calculées dans le domaine des angles rasants ; nous avons rapporté l'intensité du pic, sa position, le nombre de périodes de la multicouche et les épaisseurs des couches minces des matériaux. Nous rappelons que ces résultats sont obtenus par le programme que nous avons élaboré (annexe 5). Les éléments du tableau 6 sont des matériaux ayant des caractéristiques leur permettant d'être de bons candidats pour servir de miroirs ; ainsi, les multicouches contenant le Carbone sont des

bons réflecteurs, le Rhodium utilisé comme couche protectrice anti-usure donne de bonnes valeurs de la réflectivité et il en est de même pour l'Yttrium, qui lorsqu'il est associé à titre d'exemple aux éléments Pt et Ru, donne aussi des valeurs très appréciables à la réflexion.

*Tableau IV-6 : Epaisseurs de couches, nombre de périodes, intensité et position des pics de réflexion, de différents matériaux. ( $\lambda=1.45\text{\AA}$ )*

Matériaux(X/Y)	Epaisseur(X/Y) $\text{\AA}^\circ$	Nombre de périodes (N)	Intensité du pic %	Position du pic ( $\theta^\circ$ )
Pt / Y	24 / 56	45	62.618	0.96
Rh / Y	28 / 56	45	84.452	0.74
Rh / C	21 / 43	45	79.503	0.48
Ru / C	18 / 37	45	87.396	0.69
Ru / Si	18 / 38	68	34.761	0.71

✓ X, Y : éléments de la période.

#### 4.5. Effet d'un revêtement d'Aluminium sur les caractéristiques du pic de réflexion, aux grands angles

Nous avons simulé les courbes de réflexion dans le domaine des grands angles, de quelques matériaux ayant les caractéristiques de miroirs de Bragg dans le domaine des rayons X ; les matériaux sont les suivants : Fe/C, Co/C, W/Ti, Ni/Ti, Ni/V, W/C et W/Si. Nous avons également, étudié l'effet d'une couche mince d'Aluminium placée sur la surface de la multicouche, sur les courbes de réflexion simulées.

Dans certains cas, l'Aluminium est une couche mince utilisée en surface pour protéger la multicouche contre la corrosion ; dans d'autres cas, il est utilisé sous forme d'une couche mince très fine intercalée entre les deux couches minces des éléments de la période de la multicouche dans le but de renforcer sa cohésion et prolonger sa durée de vie. Dans la suite de ce travail, nous simulerons les courbes de réflexion des matériaux que nous venons d'évoquer avec et sans la couche d'aluminium ; nous étudierons ensuite l'effet de l'aluminium sur les courbes de réflexion simulées et en particulier sur les intensités et les positions des pics de réflexion de chaque matériau.

##### a) Système W/Ti

Les courbes de réflexion des multicouches (W/Ti) et Al/(W/Ti) sont calculées entre  $10^\circ$  et  $20^\circ$ . Les calculs ont été effectués avec les paramètres suivants  $d_W = 20 \text{ \AA}$ ,  $d_{Ti} = 25 \text{ \AA}$ ,  $d_{Al} = 30 \text{ \AA}$ ,  $N = 60$  périodes et  $\lambda = 27.4 \text{ \AA}$  (figure 28). Un seul pic, d'intensité égale à 22.78%, a été observé à  $18^\circ$ .

Dans la pratique, les multicouches (W/Ti) sont couvertes par une couche d'aluminium très fine pour les protéger contre la corrosion. La multicouche (W/Ti) revêtue à l'Aluminium, est symbolisée par Al/(W/Ti) ; qui signifie que la couche d'Aluminium vient en premier et couvre l'empilement (W/Ti). L'effet d'une couche de  $30 \text{ \AA}$  d'Aluminium sur le spectre de réflexion de (W/Ti) est observé sur la figure IV-26 ; le pic de réflexion préserve son profil et sa position mais change d'intensité. En effet, la couche d'Aluminium altère l'intensité du pic et la fait passer de 26% dans (W/Ti) à 25% dans Al/(W/Ti). Cependant, l'intensité n'est pas considérée assez affectée par la couche d'Aluminium si, en contre partie, on gagne sur la durée de vie de la multicouche.

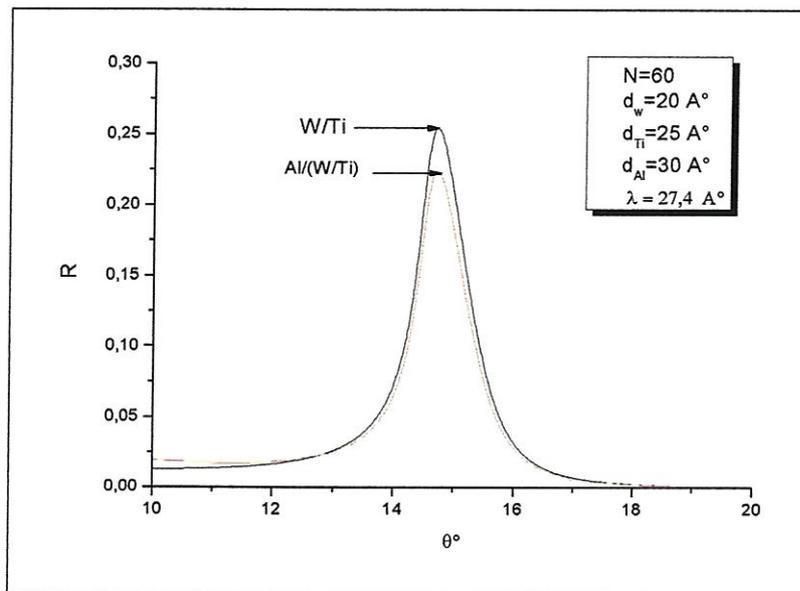


Figure IV-26: Courbes de réflexion calculées de (W/Ti) et de Al/(W/Ti)

### b) Système W/Cr

Nous avons simulé les courbes de réflexion des multicouches (W/Cr) et Al/(W/Cr) entre  $5^\circ$  et  $15^\circ$  (figure IV-27). L'étude que nous avons faite pour ce cas est identique à la précédente (W/Ti).

Les paramètres avec lesquels les calculs ont été effectués sont :  $d_w=33 \text{ \AA}$ ,  $d_{Cr}=40 \text{ \AA}$ ,  $d_{Al}=40 \text{ \AA}$ ,  $N=37$  périodes et  $\lambda=27,4 \text{ \AA}$ . Un pic d'intensité égale à 12%, centré à  $10,2^\circ$  est relevé sur la courbe de réflexion de (W/Cr). Dans la multicouche (W/Cr), revêtue à l'Aluminium, le pic subit des changements affectant son profil, son intensité et sa position ; en effet, les amplitudes des deux courbes ne sont pas les mêmes, la position du pic est déplacée légèrement vers les faibles angles ( $\sim 9,8^\circ$ ) et son intensité est de 11%. Pour ce cas aussi, l'influence de la couche d'Aluminium sur les caractéristiques du pic de réflexion n'est pas de taille comparée au rôle que peut conférer d'Aluminium à la multicouche en matière de protection.

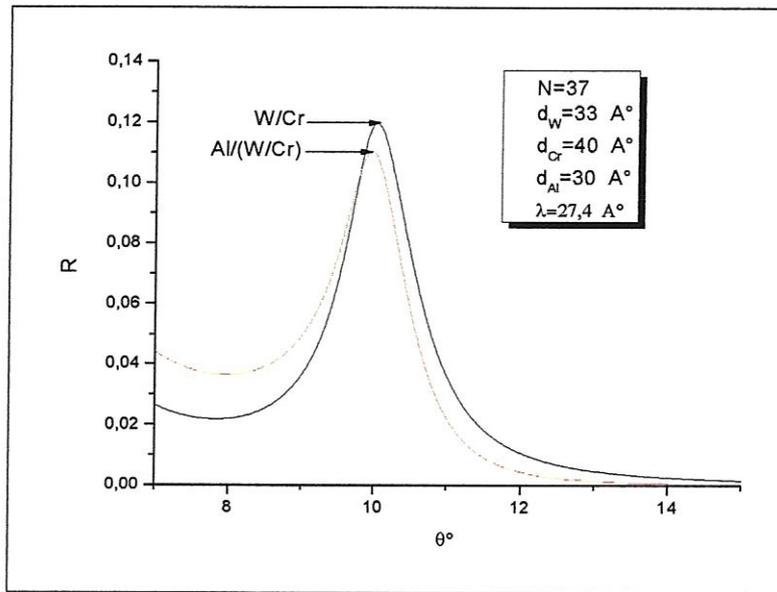


Figure IV-27: Courbes de réflexion calculées de (W/Cr) et de Al/(W/Cr).

### c) Système Ni/Ti

De la même manière que pour W/Ti et W/Cr, nous avons simulé les courbes de réflexion des matériaux Ni/Ti et de Al/(Ni/Ti) (figure IV-28). Nous avons pris les valeurs suivantes, pour les paramètres de la multicouche :  $d_{Al} = 10 \text{ \AA}$  ,  $d_{Ni} = 20 \text{ \AA}$  ,  $d_{Ti} = 25 \text{ \AA}$  ,  $N = 45$  périodes et  $\lambda = 27,4 \text{ \AA}$ . Les courbes de réflexion relatives à Ni/Ti et à Al/(Ni/Ti) sont presque identiques ; par conséquent, l'effet de  $10 \text{ \AA}$  d'Aluminium ajouté à la surface de la multicouche (Ni/Ti), ne change pratiquement pas les caractéristiques du pic de réflexion d'une manière sensible , la position du pic est la même à  $19^\circ$  et son intensité (46,8%) n'est affectée que très peu . Ce matériau, comparé aux deux précédents, présente beaucoup d'intérêts dans la pratique car son intensité est importante, même en présence d'une couche d'Aluminium.

### d) Système Fe /C

Les courbes de réflexion des multicouches (Fe/C ) et Al/(Fe/C ) (figure IV-29) sont calculées entre  $13^\circ$  et  $17^\circ$  avec les paramètres suivants :  $d_{Al} = 30 \text{ \AA}$  ,  $d_{Fe} = 20 \text{ \AA}$  ,  $d_C = 25 \text{ \AA}$  ,  $N = 58$  périodes et  $\lambda = 27,4 \text{ \AA}$ . La principale différence observée en comparant les courbes de réflexion des deux multicouches concerne l'intensité du pic centré à  $15,7^\circ$  qui passe de  $\sim 11,9 \%$  dans (Fe/C) à  $\sim 10\%$  dans Al/(Fe/C). Pour ce matériau aussi, l'ajout d'une couche d'Aluminium n'altère pas significativement ses caractéristiques.

La faible intensité du pic de ce matériau ne peut être due qu'aux faibles contrastes entre les indices de réfraction et d'absorption de (Fe) et (C).

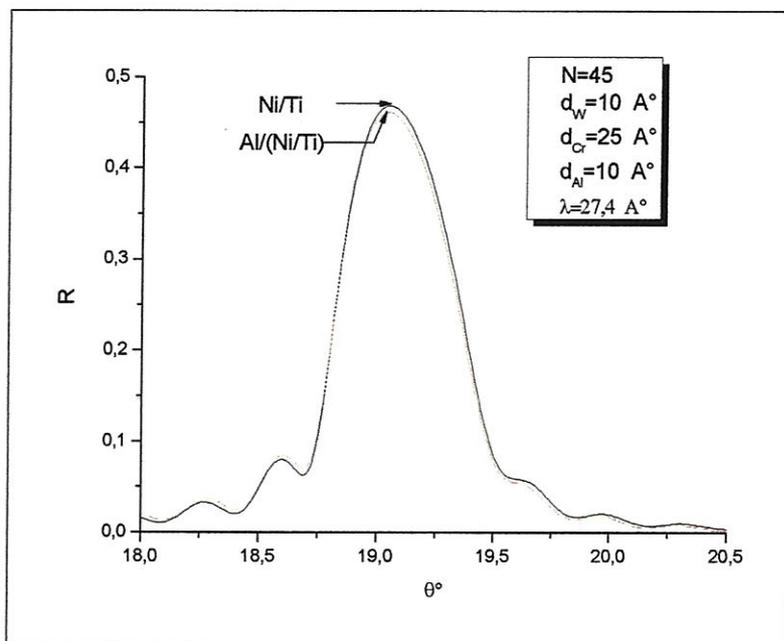


Figure IV-28: Courbes de réflexion calculées de (Ni/Ti) et de Al/(Ni/Ti)

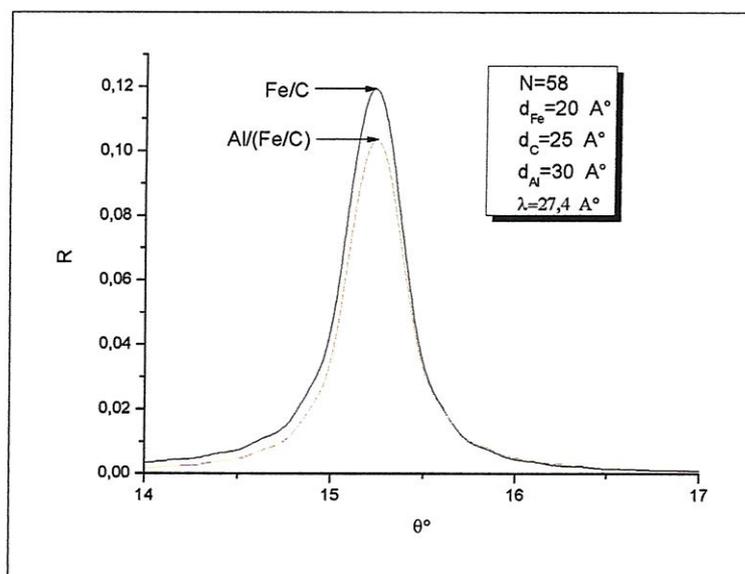


Figure IV-29: Courbes de réflexion calculées de (Fe/C) et de Al/(Fe/C)

## e) Système Co/C

Le système (Co/C) a aussi fait l'objet d'une étude théorique sur son pouvoir de réflexion dans le domaine des rayons X. Comme pour les systèmes précédents, et à cause des effets de corrosion qui affecte le métal (Co), nous avons étudié aussi le système Al/(Co/C). Les courbes de réflexion des deux matériaux simulées entre  $13^\circ$  et  $17^\circ$  sont représentées sur la figure IV-30. Les paramètres qui ont servi au calcul sont les suivants :  $d_{Co}=20 \text{ \AA}$ ,  $d_c=25 \text{ \AA}$ ,  $d_{Al}=30 \text{ \AA}$ ,  $N=60$  périodes et  $\lambda=27.4 \text{ \AA}$ .

Hormis la valeur de l'intensité du pic qui est moindre dans Al/(Co/C), le reste (allure+position) est presque identique. Pour ce matériau aussi, l'intensité du pic est faible ; les raisons sont les mêmes que celles qui s'appliquent sur le système (Fe/C) ; néanmoins, on note un écart de 4 % sur l'intensité du pic quand on passe de (Co/C) à (Fe/C).

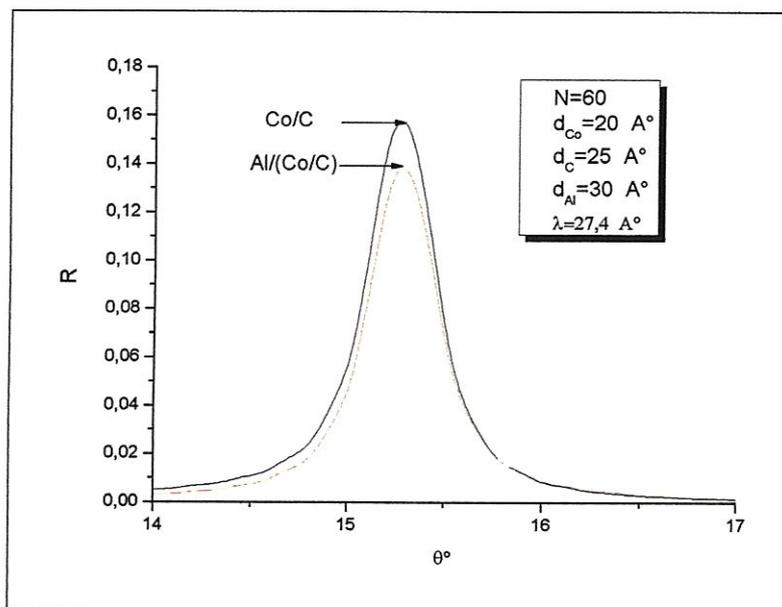


Figure IV-30: Courbes de réflexion calculées de (Co/C) et de Al/(Co/C)

✓ Le tableau 7 est un récapitulatif des caractéristiques des pics de réflexion des multicouches précédentes, avec et sans la couche de (Al) en surface.

*Tableau IV-7: Intensités et positions des pics de réflexion de différentes multicouches, avec et sans la couche superficielle de (Al) en surface.*

matériaux	L'intensité du pic de réflexion (%)	Position du pic de réflexion	L'intensité du pic de réflexion (%) (avec Al en surface)	Position du pic de réflexion (avec Al en surface)
W/Ti	25.42	14.71	22.434	14.72
W/Cr	10.02	11.96	11.04	9.96
Ni/Ti	46.82	19.00	46.12	19.00
Fe/C	11.9	15.24	10.35	15.24
Co/C	15.75	15.27	13.82	15.28

#### 4.4. Effets de l'épaisseur d'une couche d'Aluminium sur les spectres de réflexion des multicouches (Fe/C), (W/C) et (W/Si), aux petits angles

Nous avons étudié les propriétés des multicouches des matériaux (Fe/C), (W/C) et (W/Si) dans le domaine des angles rasants ; nous avons également étudié l'influence de l'épaisseur de la couche d'Aluminium, à la surface de la multicouche, sur les mêmes propriétés. Nous rappelons que la couche d'Aluminium est utilisée comme barrière de diffusion devant l'oxygène, donc elle ralentit le processus de corrosion.

Nous avons présenté les courbes de réflexion, calculées sur le domaine angulaire entre  $0.7^\circ$  et  $1^\circ$  (figure IV-31) des deux matériaux (Fe/C) et Al/(Fe/C) ; les calculs ont été effectués tenant compte des données suivantes :  $d_{Al} = 30 \text{ \AA}$ ,  $d_{Fe} = 20 \text{ \AA}$ ,  $d_C = 30 \text{ \AA}$ ,  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$  et  $N = 60$  périodes. Un pic de réflexion est repéré à  $\sim 0.85^\circ$ , d'intensité  $\sim 64\%$ . En présence de la couche d'Aluminium, le pic préserve la position de son centre, mais son intensité est affectée ; en effet, on a noté un écart important d'environ 20% entre les intensités du pic, dans les deux multicouches.

Nous avons aussi calculé les courbes de réflexion des multicouches (W/C) et Al/(W/C), entre  $0^\circ$  et  $1.5^\circ$  (figure IV-32), en variant l'épaisseur de la couche d'Aluminium.

Les paramètres avec lesquels les calculs ont été faits sont :  $d_w = 20 \text{ \AA}$ ,  $d_c = 30 \text{ \AA}$ ,  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$  et  $N = 35$  périodes. Un pic de réflexion, d'intensité importante est observé à  $\sim 0.8^\circ$  dans (W/C) ; il se trouve à la même position dans Al/(W/C), pour toutes les valeurs  $d_{Al}$  et son intensité est insensible à la variation de l'épaisseur  $d_{Al}$ .

Le même travail a été fait pour le matériau (W/Si) avec et sans revêtement d'Aluminium. Nous avons aussi investigué un éventuel changement des propriétés de ce matériau en fonction de l'épaisseur de la couche d'Aluminium à la surface. Pour cela, nous avons donc calculé les courbes de réflexion de multicouches (W/Si) et des multicouches Al/(W/Si) en fonction de  $d_{Al}$ , entre  $0.8^\circ$  et  $1.2^\circ$  (figure IV-33). Les conditions de la simulation sont :  $d_w = 18 \text{ \AA}$ ,  $d_c = 22 \text{ \AA}$ ,  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$  et  $N = 37$  périodes. Un pic de réflexion de grande intensité est repéré à  $\theta \approx 1^\circ$  dans W/Si ; son intensité, son profil et sa position sont insensibles à la valeur de l'épaisseur de la couche d'Aluminium ( $d_{Al}$ ).

Pour (W/C), comme pour (W/Si), la durée de vie de la multicouche est prolongée par ajout de la couche d'Aluminium sans que les propriétés ne soient altérées. Nous rappelons que plus l'épaisseur ( $d_{Al}$ ) est importante et plus la durée de vie du revêtement est grande.

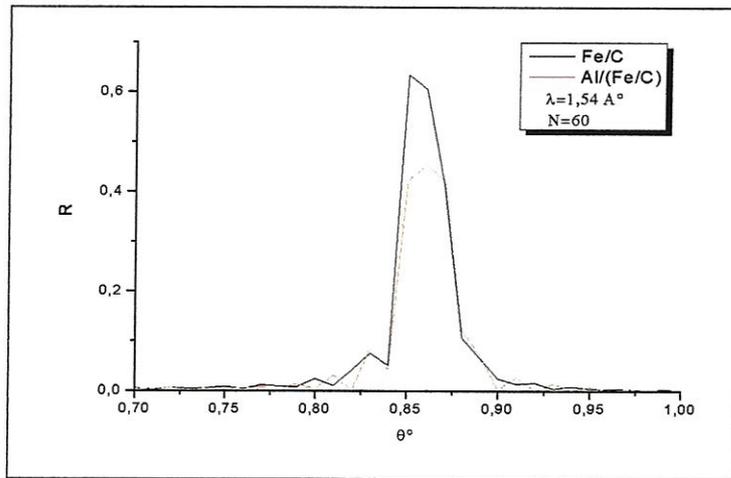


Figure IV-31: Courbes de réflexion calculées (Fe/C) et de Al/(Fe/C) .

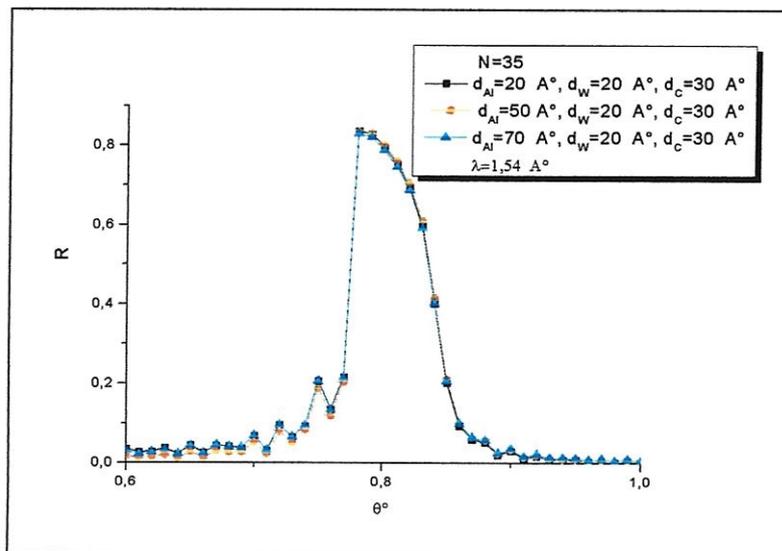


Figure IV-32 : Courbes de réflexion calculées de (W/C) en fonction de l'épaisseur de la couche d'Aluminium en surface

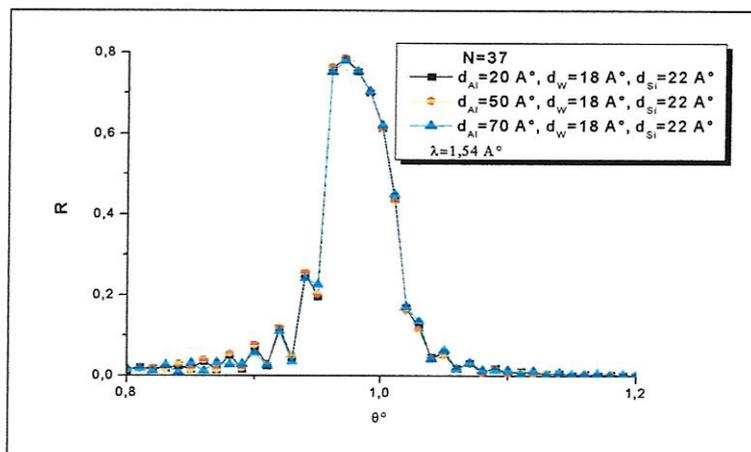


Figure IV-33: Courbes de réflexion calculées de (W/Si) en fonction de l'épaisseur de la couche d'Aluminium en surface

#### 4.6. Effet de l'intercalation d'une couche ultramince de Carbone (C) sur les propriétés des multicouches (Al/Y) et (W/Si)

##### a) Multicouche (Al/Y)

Le matériau (Al/Y) est utilisé dans la pratique comme miroir dans le domaine des rayons X. Nous avons calculé sa courbe de réflexion dans le domaine des angles rasants dans les conditions suivantes :  $d_{Al} = 45 \text{ \AA}$ ,  $d_Y = 45 \text{ \AA}$ ,  $N = 40$  périodes et  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$  (figure IV-34). Un pic de réflexion intense, d'intensité égale à peu près à 60 % est observé ; il est centré à  $\sim 0.47^\circ$ . Bien que le miroir (Al/Y), dans ces conditions, possède une bonne réflexion mais malheureusement, l'expérience a montré que sa durée de vie n'est que de quelques heures, temps suffisant pour augmenter considérablement l'épaisseur de la couche d'Alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) en surface. L'Alumine est poreuse, elle réduit, par conséquent, l'intensité du rayonnement réfléchi par la multicouche. Des traitements, par voie électrochimique, peuvent remédier à ce problème et peuvent donc améliorer la protection de la couche de revêtement anti-corrosion.

Cependant, il est possible de réaliser une multicouche de ce matériau avec une durée de vie acceptable en intercalant le Carbone (C) entre les deux couches minces de deux métaux (Al) et (Y) ; on obtient alors une nouvelle structure dans la configuration (Y/C/Al/C). Dans la pratique, ce nouveau matériau (Y/C/Al/C) a montré qu'il avait une durée de vie assez importante. Nous allons donc calculer sa courbe de réflexion et la comparer, ensuite, avec celle du matériau (Al/Y).

La courbe de réflexion de la multicouche (Y/C/Al/C) est calculée entre  $0.4^\circ$  et  $0.54^\circ$  (figure IV-34) dans les mêmes conditions que (Al/Y) en intercalant cette fois-ci, une couche de Carbone d'épaisseur égale à  $7 \text{ \AA}$  entre les deux couches minces de (Al) et de (Y). Le pic observé pour ce nouveau matériau est plus large que le pic de (Al/Y) ; il est moins intense et la position de son centre est repoussée aux faibles angles d'incidence. Ces résultats théoriques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux [35].

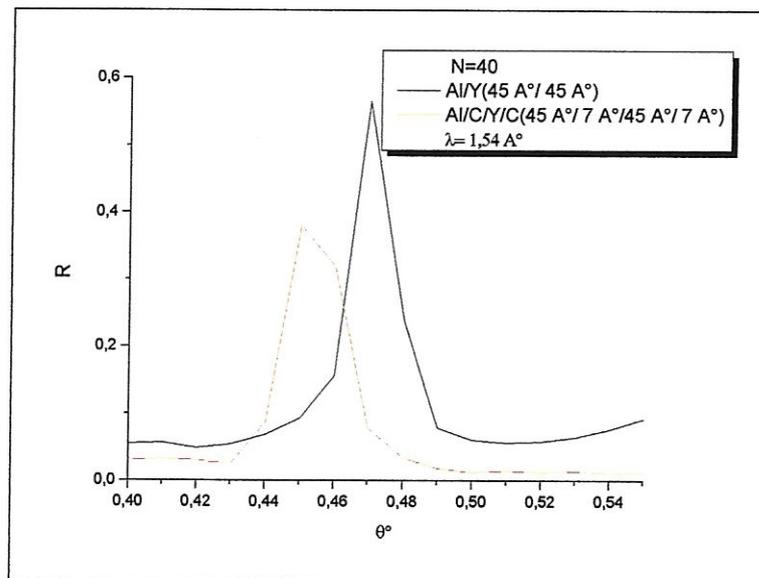


Figure IV-34: Courbes de réflexion calculées de (Al/Y) et (Al/C/Y/C)

### b) Multicouche W/Si

Le même travail effectué sur la multicouche (Al/Y), a été appliqué sur la multicouche (W/Si). Nous avons d'abord calculé la courbe de réflexion de la multicouche (W/Si) entre  $0.7^\circ$  et  $1.2^\circ$  (figure IV-35); les conditions selon lesquelles le calcul a été fait sont les suivantes :  $d_w=18 \text{ \AA}$ ,  $d_{si}=22 \text{ \AA}$ ,  $N=35$  périodes et  $\lambda=1.54 \text{ \AA}$ . Un pic de réflexion, d'intensité égale à  $\sim 79.21 \%$ , apparaît à  $\sim 0.97^\circ$ . Nous avons, dans le but d'améliorer davantage le pouvoir de réflexion de la multicouche W/Si, intercaler une couche de Carbone entre les deux couches minces de (W) et de (Si) formant la période. Les courbes de réflexion de la nouvelle multicouche (W/C/Si/C/W) ont été calculées pour deux valeurs de l'épaisseur de la couche de Carbone ( $d_c=3 \text{ \AA}$  et  $7 \text{ \AA}$ ) (figure IV-35). Nous avons constaté que lorsque l'épaisseur de la couche de Carbone augmente, l'intensité du pic augmente et la position du pic est repoussée vers les petites valeurs de l'angle d'incidence. L'intercalation du Carbone dans la multicouche (W/Si) améliore son pouvoir de réflexion, contrairement à ce qui a été observé sur le matériau (Al/Y), où le pouvoir de réflexion baisse en présence de la couche e Carbone intercalée.

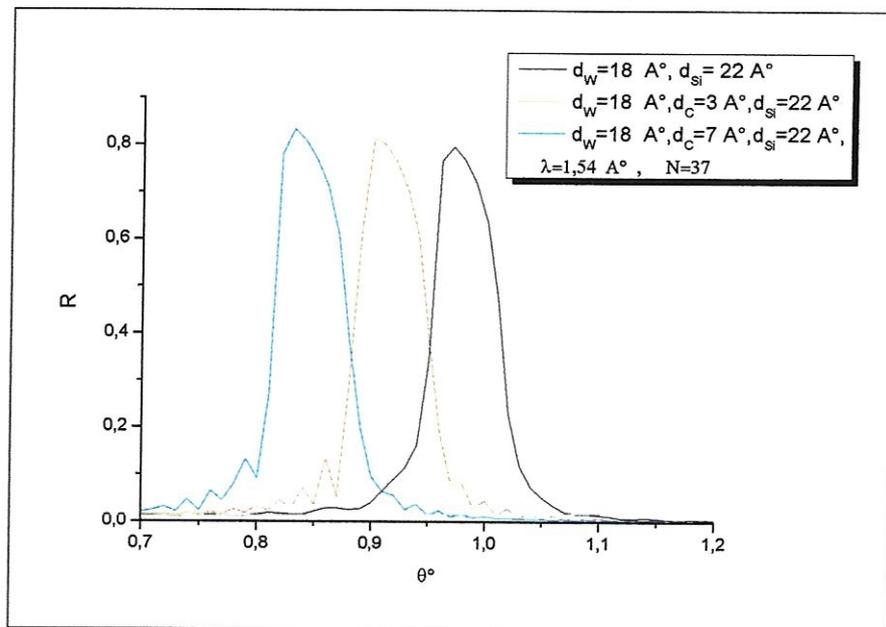


Figure IV-35: Courbes de réflexion calculées de (W/Si) et (W/C/Si/C)

## Conclusion

Nous avons simulé les courbes de réflexion des superstructures présentées sous forme de d'un empilement de couches minces alternées. L'empilement, appelé aussi multicouche, est obtenu par la répétition d'une période formée de deux couches minces faiblement absorbantes et d'indices optiques très différents.

Un programme informatique a été élaboré, son principal objectif est la simulation des courbes de réflexion des multicouches dans le domaine des rayons x, sur un large domaine angulaire incluant le domaine des petits et grands angles d'incidence (entre  $0^\circ$  et  $90^\circ$ ). Les principaux fondements théoriques sur lesquels nous nous sommes basés pour élaborer le programme sont tirés du modèle d'Abèles pour les couches minces; nous avons utilisé la méthode de la matrice de transfert qui représente une couche mince par une matrice carrée. Nous avons ensuite étendu les développements pour calculer la matrice de transfert pour le cas de la superstructure (multicouche) qui permet le passage du milieu d'entrée au milieu de sortie. Ces développements ont conduit aux expressions de la réflexion et de la transmission de la multicouche ; les intensités de ces deux grandeurs se sont montrées dépendantes de trois paramètres essentiels, qui sont : les épaisseurs des couches minces des éléments de la période, le nombre de périodes, la longueur d'onde du rayonnement utilisé, les indices de réfraction des éléments de la période calculés à partir de leurs facteurs de diffusion atomiques relevés des tables de D.Windt et la taille des rugosités de surface.

Nous avons, après élaboration du programme, étudié quelques systèmes en multicouches ayant des caractéristiques intéressantes dans le domaine des rayons x et pouvant donc jouer pleinement le rôle d'un miroir de Bragg. Nous avons, à titre d'exemple, étudié des multicouches ayant comme substrat le silicium (Si) : W/Si, Si/C, Ru/Si et d'autres ayant comme substrat le carbone (C) : W/C, Ni/C, Pt/C, Fe/C et autres systèmes; l'étude est faite à travers le calcul des courbes de réflexion. L'amélioration des caractéristiques et de la qualité des multicouches a été basée sur l'amélioration de l'intensité des pics de réflexion relevés sur les courbes en modifiant les paramètres de la multicouches, principalement le nombre de périodes. Nous avons aussi, étudié l'effet de taille d'une couche mince d'aluminium en surface sur les propriétés des multicouches; nous avons également étudié l'effet de l'intercalation d'une couche de carbone entre les couches minces des éléments de la période,

sur les caractéristiques de la multicouche ; dans les deux cas, nous avons simulé les courbes de réflexion aux petits et aux grands angles d'incidence.

Les résultats des calculs ont montré que les propriétés des multicouches ne sont pas altérées d'une manière importante lorsqu'elles sont revêtues à l'aluminium ou intercalées au carbone; par contre, leur qualité s'améliore.

## Références

- [1]-F. Wooten, optical properties of solids, Academic Press, New-York, p25-27 ,1972
- [2]-B. K. Agwel, X-ray spectroscopy , Springer-Verlag, p110, 1991
- [3]-Mark Fox. Optical proprieties of solids. University of Seiffield. Oxford (2001)
- [4]- P.Kuel, Electromagnétisme des milieux continus, Université Paris Nord, p25-29, 2001
- [5]-K.E.Peiponen .EM Vartiainen. Dispersion complex analysis and optical spectroscopy .Sprenger(1999).
- [6]-F Gervais, optical conductivity of oxides, Materials Science and Engineering R 39 (2002) 29-92.
- [7]- Cyriaque Genet, Thèse de Doctorat, Université Paris VI.
- [8]-M.Drssel et G.Grüner. Electrodynamics of solids . Los Angles. Combridge University Press(2002).
- [9]-P. René Paul Salathé , Optique , Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne.
- [10]- J.-J. Labathe, Electromagnétisme, Université Paris Sud Orsay.
- [11]-A. F. Benhabib, A. Hadjadj , Optique Physique , OPU.
- [12]- David Sénéchal, Ondes électromagnétique, Université de Sherbrooke Faculté des Sciences .
- [13]- Peter Hsih-Jen Mao, Hard x-ray observations of the extragalactic sky. California Institute of Technology Pasadena, California.
- [14]-M. Sébastien Rabasate, Thèse de Doctorat, l'Université CLAUDE BERNARD-LYON 1.
- [15]-M.J.H. Kessels, Thèse de Doctorat, University of Twente .
- [16]-Yamamoto Kiyoshi, optical theory applied to thin films,(Case Western Reserve University.May1994). p217
- [17]-Coline Cole, Thèse de Doctorat , University of Reading UK(1995).
- [18]-A.Apolonskiy. Multilayer dielectric coating. Praktikum für fortgeschrittene Physikstudenten(2002)
- [19]-P.Tripathi, G.S.Lodha, M.H.Modi, A.K.Sinha, K.T.Sawhney, R.V.Mandredkar, Optics communication (ELSEVER) 211(2002)215-225.
- [20]- G.Almuneau, Thèse de Doctorat, Université Montpellier II.
- [21]- METHODES SPECTROMETRIQUES D'ANALYSE ET DE CARACTERISATION I  
Ecole des Mines de Saint-Etienne.

- [22]-Jean-luc Martin , Thèse de Doctorat, Presse Polytechniques et Universitaires Romondes.
- [23]-R.Ouahes , Elément de Radiocristallographie ,OPU.
- [24]-METHODES SPECTROMETRIQUES D'ANALYSE ET DE CARACTERISATION II. Ecole des Mines de Saint-Etienne.
- [25]- L.G Parratt , Phy , Rev 95 :395(1954)
- [26]-S.Caticha&Ellis. Anomalous dispersion of X ray in crystallography. U.College Cardiff, International Union of crystallography (1981).
- [27]-K Stoev&K Sakurai , Rigaku journal (vol 14)1997.
- [28]-M.Grigorius , Thèse (P h.D.), Faculté des études supérieurs de l'université Laval, Qubec (1997) .
- [29]- BJÖRN Galnander , Thèse de Doctorat , Uppsala University.(2001)
- [30]- J-S MICHA. Thèse de Doctorat. GRENOBLE I (2002)
- [31]-A.Gibaud, S.Hazra. Curent Science, vol 78, N° 12,25 (2000).
- [32]-VK Egorov, EV Egorov. arXiv: physic/010159 v1 (2001) .
- [33]- David L. Windt : IMD-Soft ware for modelling the optical proprieties of multilayer films (Bell Laboratories)
- [34]-A.G.Boudjahem, Mémoire de Magistère . Université Guelma.
- [35]-DI Windt. Crystal and Multilayer Optics . SPIE 3448,1998.

## Annex1

### Formulaire pour le calcul des propriétés optiques en incidence normale d'un système multicouche

Les équations de Maxwell conduisant à résoudre les relations résultant des conditions de continuité de composantes tangentielles du champ électrique et magnétique. En incidence normale, on écrit :

$$\begin{bmatrix} E_a \\ H_a \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{n_1} \cdot \sin \delta \\ i \cdot n_1 \cdot \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_b \\ H_b \end{bmatrix} \quad \text{Avec : } \delta = \frac{2 \cdot \pi \cdot d}{\lambda} \cdot \tilde{n} \cdot \cos \theta \quad .$$

On introduit la notion de l'admittance  $y = \frac{H_a}{E_a}$

et sur la surface du substrat  $n_s : n_s = \frac{H_b}{E_b}$

On pose  $y=C/B$  avec :  $\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{n_1} \cdot \sin \delta \\ i \cdot n_1 \cdot \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1 \\ n_1 \end{bmatrix}$

Le coefficient de réflexion de l'empilement est :

$$R = \left( \frac{n_0 - y}{n_0 + y} \right) \left( \frac{n_0 - y}{n_0 + y} \right)^* \quad . \quad \text{S'il n'y a pas d'absorption, on a : } T=1-R.$$

Pour un empilement à P couches minces, au lieu d'une matrice, on a un produit de (P) matrices.

On calcule :  $\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \prod_{i=1}^P \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{n_1} \cdot \sin \delta \\ i \cdot n_1 \cdot \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1 \\ n_1 \end{bmatrix}$

Avec :  $\delta = \frac{2 \cdot \pi \cdot d}{\lambda} \cdot \tilde{n} \cdot \cos \theta$

## Annexe 2

Une couche mince est délimitée par deux interfaces : interface aire/matériau et interface matériau/substrat. La présence de ces deux interfaces signifie qu'un certain nombre de faisceaux lumineux seront produits par des réflexions successives et les propriétés de la couche mince seront déterminées après l'addition de tous les champs correspondants.

Les calculs de la transmission et de la réflexion résultent des conditions de continuité aux interfaces :

$$\begin{aligned} E_b &= E_b^+ + E_b^- \\ H_b &= \eta_1 E_b^+ - \eta_1 E_b^- \end{aligned}$$

L'équation de l'onde s'écrit :

$$\begin{aligned} E_b^+ &= \frac{1}{2} \left( \frac{H_b}{\eta_1} + E_b \right) \\ E_b^- &= \frac{1}{2} \left( \frac{-H_b}{\eta_1} + E_b \right) \end{aligned}$$

L'amplitude de l'onde qui traverse une couche de matériau absorbant est donnée comme suit :

$$\begin{aligned} E_a^+ &= \frac{1}{2} \left( \frac{H_b}{\eta_1} + E_b \right) e^{i\delta} \\ E_a^- &= \frac{1}{2} \left( \frac{-H_b}{\eta_1} + E_b \right) e^{-i\delta} \\ H_a^+ &= \eta_1 E_b^+ = \frac{1}{2} (H_b + \eta_1 E_b) e^{i\delta} \\ H_a^- &= -\eta_1 E_b^- = \frac{1}{2} (H_b + \eta_1 E_b) e^{-i\delta} \end{aligned}$$

on a alors :

$$\begin{aligned} E_a^+ &= E_a^+ + E_a^- = E_a \cos \delta + H_a \frac{i \sin \delta}{\eta_1} \\ E_b^+ &= E_b^+ + E_b^- = E_b i \eta_1 \cos \delta + H_b \cos \delta \end{aligned}$$

Ce qui conduit à la matrice de transfert :

$$\begin{bmatrix} E_a \\ H_a \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{i}{N} \cdot \sin \delta \\ i \cdot N \cdot \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_b \\ H_b \end{bmatrix}$$

### Annexe 3

#### Indice de réfraction dans le domaine des rayons X

##### Modèle Lorentz

L'indice de réfraction complexe des matériaux dans le domaine des rayons X s'écrit sous la forme suivante :

$$\tilde{n} = 1 - \delta - i\beta \quad (1)$$

La constante diélectrique est reliée à l'indice réfraction par la relation suivante:

$$\tilde{\epsilon} = \tilde{n}^2 \quad (2)$$

donc :

$$\tilde{\epsilon} = (1 - \delta - i\beta)^2 = 1 - 2 \cdot \delta - 2 \cdot i \cdot \beta \quad (3)$$

Où  $\delta_q$  et  $\beta_q$  sont respectivement les coefficients de dispersion et d'absorption pour les électrons symbolisés par la lettre 'q', vérifiant les relations :

$$\delta = \sum_q \delta_q \quad \text{et} \quad \beta = \sum_q \beta_q \quad (4)$$

Le déplacement électrique  $\vec{D}$  pour un milieu polarisé s'écrit pour les électrons de type 'q' sous la forme suivante :

$$\vec{D} = \tilde{\epsilon}_q \vec{E} = \vec{E} + 4\pi \vec{P}_q \quad (5)$$

Avec :

$$\tilde{\epsilon}_q = 1 - 2 \delta_q - 2 i \beta \quad (6)$$

$\tilde{\epsilon}_q$  est la constante diélectrique partielle complexe des électrons de type 'q'.

Par analogie avec l'équation I-22 (chapitre 1), la constante diélectrique partielle est donnée par la relation suivante :

$$\varepsilon = \left( 1 + \frac{4\pi N e^2}{m} \left( \frac{1}{\omega_q^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \right) \right) \quad (7)$$

où  $\omega_q$  est la fréquence d'absorption due aux transitions électroniques des électrons de type 'q' en comparons les deux expressions (6) et (7) on obtient les expressions de  $\delta_q$  et  $\beta_q$  :

$$\delta_q = - \frac{2\pi N_q e^2 m (\omega_q^2 - \omega^2)}{m^2 (\omega_q^2 - \omega^2) + 4e^4 \frac{\omega^6}{9c^6}} = \frac{2\pi N_q e^2}{m \omega^2} f' \quad (8)$$

$$\beta_q = \frac{4\pi N_q e^4 \omega^3}{3c^3 m^2 [(\omega_q^2 - \omega^2)^2 + 4e^4 \frac{\omega^6}{9c^6}]} = \frac{2\pi N_q e^2}{m \omega^2} f''$$

Avec  $f = f' - i f''$  le facteur de diffusion atomique complexe, donc  $f'$  et  $f''$  sont en fonction de l'énergie de l'onde incidente :

$$f' = \frac{\omega^2 (\omega_q^2 - \omega^2)}{(\omega^2 - \omega_q^2)^2 + \Gamma^2 \omega^2} \quad (9)$$

$$f'' = \frac{\Gamma \omega^3}{(\omega^2 - \omega_q^2)^2 + \Gamma^2 \omega^2}$$

$$\text{Avec } \Gamma = \frac{2e^2 \omega^2}{3m c^3}$$

Le terme d'amortissement  $\Gamma$  est faible devant le deuxième terme à gauche dans le système d'équations (9), donc on peut le négliger. Les expressions de  $\delta_q$  et  $\beta_q$  après une première approximation sont :

$$\delta_q = \frac{2\pi N_q e^2}{m} \frac{1}{(\omega^2 - \omega_q^2)} \quad (10)$$

$$\beta_q = \frac{4\pi N_q e^4}{3m^2 c^3} \frac{\omega^3}{(\omega^2 - \omega_q^2)^2}$$

En supposant l'énergie du matériau  $\omega_q$  très inférieure devant l'énergie du rayonnement utilisé  $\omega$  ( $\lambda \ll \lambda_q$ ), après calcul les coefficients de dispersion et d'absorption sont donner par les expressions suivantes:

$$\delta = \sum_q \delta_q = \sum_q \frac{2.\pi.N_q.e^2}{m} \cdot \frac{1}{\omega^2 \left(1 - \frac{\omega_q^2}{\omega^2}\right)} \quad (11)$$

$$\beta = \sum_q \beta_q = \sum_q \frac{4.\pi.N_q.e^2}{3.m} \cdot \frac{1}{\omega \left(1 - \frac{\omega_q^2}{\omega^2}\right)^2}$$

Sachant que  $\frac{\omega_q}{\omega} \ll 1$ , on obtient finalement :

$$\delta \cong \frac{2.\pi.e^2}{m.\omega^2} \sum_q N_q \cong \frac{2.\pi.e^2.N}{m.\omega^2} \quad (12)$$

$$\beta \cong \frac{2.\pi.e^4.N}{3.m.c^3.\omega}$$

$$\text{avec : } N = \sum_q N_q = \frac{\rho.N_A.Z}{A}$$

N : est le nombre d'électrons par unité de volume.

$\rho$  : La masse volumique.

$N_A$  : nombre d'Avogadro.

Z : le nombre atomique.

A : masse atomique du matériau.

En remplaçant les constantes par leurs valeurs numériques, on obtient :

$$\begin{aligned} \delta &\cong 2,7007 \cdot 10^{+10} \frac{\rho.Z.\lambda^2}{A} \\ \beta &\cong 3,1871 \cdot 10^{-2} \frac{\rho.Z.\lambda}{A} \end{aligned} \quad (13)$$

## Annex4

### Indice de réfraction dans le domaine des rayons X

La théorie classique de dispersion assume que l'atome disperse un rayonnement comme si il a été constitué par des dipôles oscillateurs dont les fréquences normales sont ceux des limites d'absorption du nuage électronique. Ces oscillateurs peuvent être considérés comme l'origine des vibrations harmoniques simples des charges électroniques, comme par exemple, le mouvement d'un électron de masse 'm' autour du noyau positif considéré au repos. L'onde électromagnétique incidente sur l'atome a un champ électrique instantané  $E = E_0 e^{i\omega t}$ . Le déplacement de l'électron satisfait alors l'équation différentielle :

$$\ddot{x} + kx + \omega_s^2 x = \frac{eE_0}{m} \cdot e^{i\omega t} \quad (1)$$

Où 'k' est le vecteur d'atténuation et ' $\omega_s$ ' la fréquence des électrons.

La solution est donnée par :

$$x = \frac{eE_0}{m} \cdot \frac{e^{i\omega t}}{\omega_s^2 - \omega^2 + ik\omega} \quad (2)$$

et le moment du dipôle est donnée par :  $M = ex$

Le dipôle oscille avec la même fréquence de l'oscillation ; l'amplitude de l'onde, à une distance d'unité dans un plan équatorial, est :

$$A = \frac{e^2}{mc^2} \cdot \frac{\omega^2 E_0}{\omega_s^2 - \omega^2 + ik\omega} \quad (3)$$

Le facteur de dispersion du dipôle est défini, comme le rapport entre l'amplitude dispersée 'A' et celle dispersée par un électron libre  $A_e$ . Dans ce cas-ci, l'amplitude de Thomson, est obtenue en prenant le  $\omega_s = 0$ ,  $k = 0$  soit :

$$A_e = -\frac{e^2}{mc^2} \cdot E_0 \quad (4)$$

Le facteur de dispersion est donné par la relation suivante :

$$f = \frac{A}{A_e} = \frac{\omega^2}{\omega^2 - \omega_s^2 - ik\omega} \quad (5)$$

Si  $\omega$  tend vers  $\omega_s$ , le facteur de dispersion devient alors imaginaire.

L'expression (5) est très importante ; de plus le facteur de dispersion atomique résulte de la superposition des termes semblables en considérant l'atome composé d'une distribution des oscillateurs. Dénotons par  $f'$  et  $f''$  respectivement, la partie réelle et la partie imaginaire de  $f$ :

$$f = f' + if'' \quad (6)$$

$$f' = \frac{\omega^2(\omega^2 - \omega_s^2)}{(\omega^2 - \omega_s^2)^2 + k^2\omega^2} \quad (7)$$

$$f'' = \frac{k\omega^3}{(\omega^2 - \omega_s^2)^2 + k^2\omega^2}$$

Indépendamment de la dépendance de  $f'$  de la fréquence, la conclusion qu'on peut tirer est que le facteur de dispersion contient une partie réelle et une imaginaire.

Si le milieu se compose de 'N' dipôles semblables par unité de volume, il peut être prouvé que l'indice de réfraction complexe  $\tilde{n}$  s'écrit sous la forme :

$$\tilde{n} = 1 - \frac{2\pi N e^2}{m\omega^2} \cdot f \quad (8)$$

Qui s'écrit sous la forme suivante :  $\tilde{n} = 1 - \delta - i\beta$  (9)

Donc :

$$1 - \delta = 1 - \frac{2\pi N e^2}{m\omega^2} \cdot f' \quad (10)$$

$$\beta = \frac{2\pi N e^2}{m\omega^2} \cdot f''$$

## Annex5

### Organigramme

#### a) Organigramme pour un multicouche idéal

La faible réflectivité des matériaux dans le domaine X-UV est un grand inconvénient pour les diverses applications des rayons X. Les valeurs réelles de la réflectivité, obtenues en utilisant ces matériaux ne peuvent être appliquées en pratique sans causer des difficultés majeures. La faible réflectivité dans le domaine des rayons X rend très mauvaise la performance des systèmes optiques. Cela exige un nouveau concept pour augmenter sensiblement la réflectivité dans cette région spectrale. Donc, il est recommandable d'utiliser des systèmes multicouches en forme de sandwich.

Le calcul du spectre de réflexion d'une multicouche peut s'effectuer aisément en utilisant le formalisme matriciel. Chaque couche mince de la multicouche est décrite par une matrice carrée ( $M_c$ ) et le calcul du spectre de réflexion de la multicouche supposée idéale en fonction de l'angle d'incidence se résume à de simples multiplications de matrices  $2 \times 2$ . Notre programme est conçue de façon à effectuer des calculs pour des systèmes à un grand nombre de périodes, connaissant les matrices caractérisant les éléments de la période.

L'optimisation du pouvoir réflecteur d'une multicouche est investigué pour un rayonnement incident de longueur d'onde ( $\lambda$ ) en variant l'angle d'incidence. Le système est constitué de  $N$  périodes, dont chacune est caractérisée par la matrice  $M_p$  :

$$M = \prod_{i=1}^N M_p = (M_p)^N \quad (1)$$

$M$  : matrice de transfert de la multicouche.

$$M_p = \begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix}$$

Avec :

$$\begin{aligned} a &= \cos \delta_1 \cos \delta_2 - \frac{N_2}{N_1} \sin \delta_1 \sin \delta_2 & b &= \frac{i}{N_2} \cos \delta_1 \sin \delta_2 + \frac{i}{N_1} \sin \delta_1 \cos \delta_2 \\ c &= iN_1 \sin \delta_1 \cos \delta_2 + iN_2 \sin \delta_2 \cos \delta_1 & d &= \cos \delta_1 \cos \delta_2 - \frac{N_2}{N_1} \sin \delta_1 \sin \delta_2 \end{aligned}$$

Le calcul nécessite l'introduction des paramètres ci-dessous, caractérisant les couches minces de la période :

- 1-  $f_1$  et  $f_2$  : facteurs de diffusion de dispersion et d'absorption des deux couches minces.
- 2- Les épaisseurs des deux couches minces.
- 3- Le nombre de périodes (N).
- 4- La longueur d'onde du rayonnement ( $\lambda$ ).

### b) Organigramme pour une multicouche non idéale

Dans le cas réel (en pratique), les interfaces ne sont pas parfaitement planes et présentent des irrégularités (multicouche non idéale). Les tests de réflectivité permettent de déduire une valeur moyenne en supposant une distribution gaussienne des tailles des défauts (rugosités) situés à la surface de séparation. La réflexion (R) d'une multicouche est alors corrigée en introduisant un facteur atténuant l'intensité réfléchié ; cela rend la valeur de la réflexion de la surface rugueuse moins grande que celle de la surface plane (idéale). Afin d'inclure cet effet dans les calculs, on utilise le facteur de Debye-Waller, dont l'expression est donnée par :

$$R = R_0 \exp(-\Psi \cdot \sigma^2) \quad (2)$$

Avec 
$$\Psi = 2 \cdot \left( \frac{2 \cdot \pi \sin \theta}{\lambda} \right)^2$$

R : réflectivité d'un système non idéal.

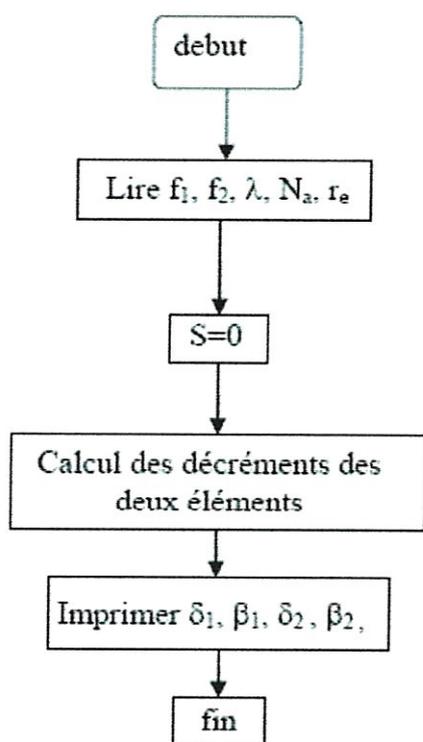
$R_0$  : réflectivité d'un système idéal.

$\sigma$  : rugosité quadratique moyenne.

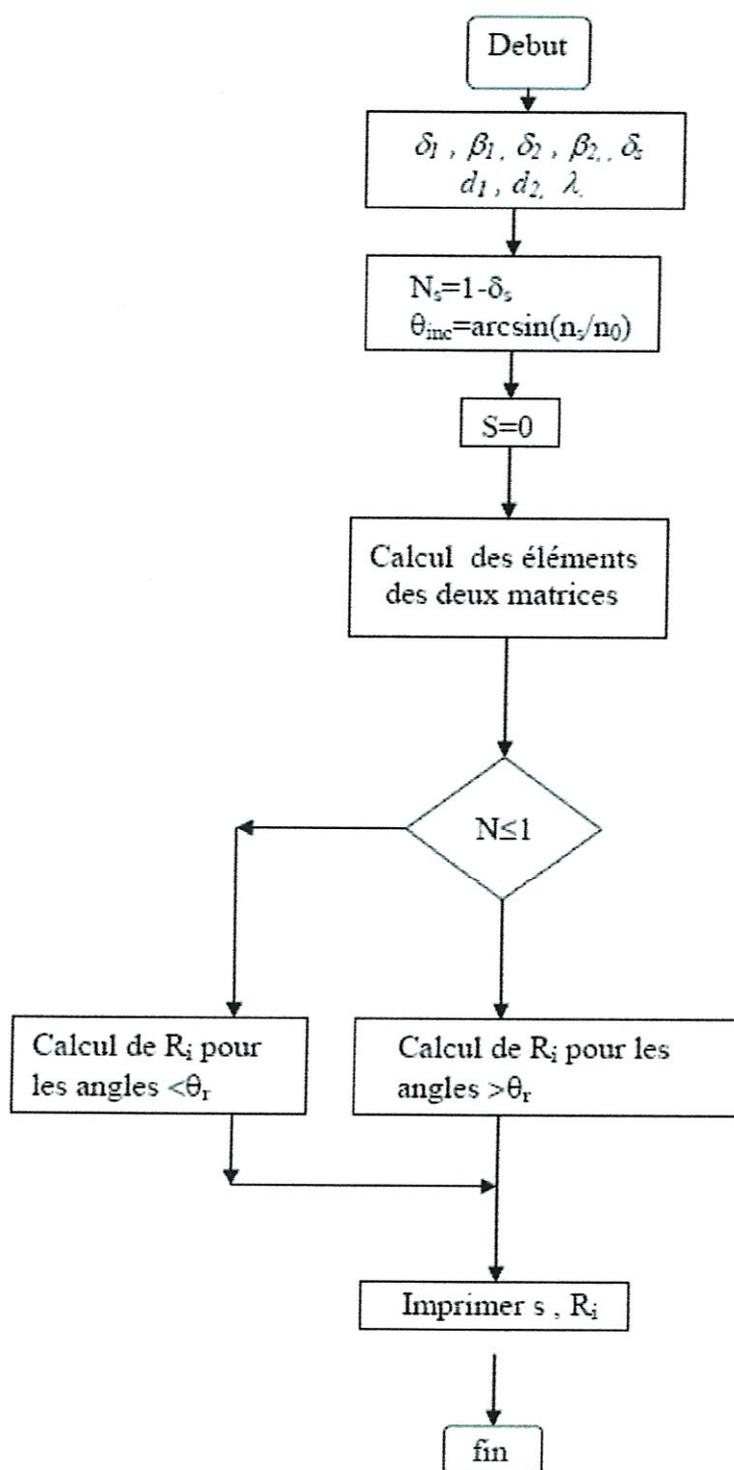
$\Psi$  : coefficient qui dépend de la longueur d'onde du rayonnement considéré ( $\lambda$ ).

Ces trois programmes nous permettent de calculer la réflexion d'une multicouche composée d'un nombre considérable de périodes, soit en la considérant idéale ou en tenant compte de la rugosité.

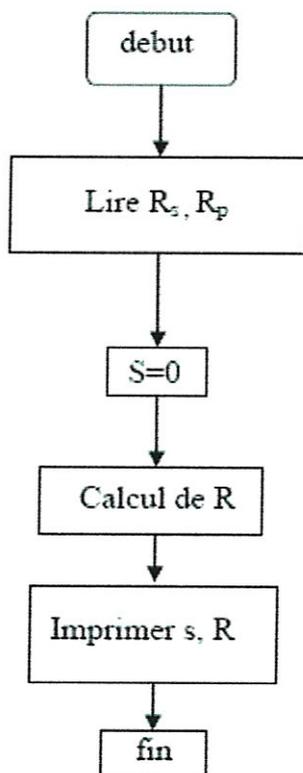
Organigramme N°1



Organigramme N°2



Organigramme N°3



## Programme

**Calcul** delta1,delta2,beta1,beta2,deltas

```
program facteur(f1,f2,f11,f22,f)
  implicit none
  double precision::beta1,beta2,delt1,delt2
  double precision:: lamd,pi, n0,nns
precision,dimension(2)::d, delta,beta,delt
  double precision,parameter::nn0=1.0d0
  iNTEGER:: i,j,k,s
  real ang, ALR,ALD, SLD,angs,agf
  double precision::z,a
  double precision::er,AZ,PP
  double precision::nats,as,nas
  double precision:: f1,f2,f11,f22,na1,na2,a1,a2,nat1,nat2
  double precision::f !substrat
  complex,parameter::Ic=(0,1)
  !!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
  nas=(nats)/(as**3)
  na1=(nat1)/(a1**3)
  na2=(nat2)/(a2**3)
  dels=((f* nas*er*lamd**2)/(2*pi))
  delt1=(f1*na1*er*lamd**2)/(2*pi)
  beta1=(f2*na1*er*lamd**2)/(2*pi)
  delt2=(f11*na2*er*lamd**2)/(2*pi)
  beta2=(f22*na2*er*lamd**2)/(2*pi)
  write(*,*) dels
  do i=1,2
  delt(1)=delt1
  delt(2)=delt2
  beta(1)=beta1
  beta(2)=beta2
  end do
  write(*,*) delt
  write(*,*) beta
!nats,nat1:nombre d'atome dans la maille
!as,a1:le parametre du reseaux
!er: rayon electron
  end
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
!!!!!!!
```

**Calcul R<sub>s</sub>**

```
program refs
  implicit none
  double precision::Qs,HH,GG,FF,dels,trans
  double precision::kappa, lamd,pi, ref,n0,nns,Qs,yy,FR,Ntild1
  double precision,dimension(2)::delt,delta,d,kapd,beta
  double precision,dimension(2)::alpha,gama,deter,p,q,KLM,KLJ,KL
  double precision,parameter::nn0=1.0d0
```

```

complex::ree, tr, cree, re, cre, ns, psi1, psi2, trg, ctr, jh
INTEGER:: i, j, k, s
real ang, ALR, ALD, SLD, angs, agf
integer, parameter:: l=25
complex, dimension(2):: psi, Ntild, Nd
complex, dimension(2,2):: M, T, R, RR
double precision:: z, a
complex, parameter:: Ic=(0,1)
double precision, parameter:: sigma
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
kappa=2.d0*pi/lamd
do s=0,1000
yy=0.012052372*s
ang=(pi/180)*(90-yy)
n0=nn0*cos(ang)
Qs=(1-dels)
ALR=asin(Qs/nn0)
ALD=(180/pi)*ALR
SLD=90-ALD
do i=1,2
delt(i)=1-delta(i)
kapd(i)=kappa*d(i)
alpha(i)=((delt(i))**2)-((beta(i))**2)-(nn0**2*(sin(ang))**2)
gama(i)=delt(i)*beta(i)
deter(i)=sqrt((alpha(i))**2+4*(gama(i))**2)
P(i)=sqrt((alpha(i)+deter(i))/2)
q(i)=gama(i)/P(i)
Ntild(i)=p(i)-(Ic*q(i))
! !!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
psi1=kapd(1)*(P(1)-Ic*q(1))
psi2=kapd(2)*(P(2)-Ic*q(2))
M(1,1)=ccos(psi1)
M(1,2)=Ic*csin(psi1)/Ntild(1)
M(2,1)=Ic*csin(psi1)*Ntild(1)
M(2,2)=ccos(psi1)
T(1,1)=ccos(psi2)
T(1,2)=Ic*csin(psi2)/Ntild(2)
T(2,1)=Ic*csin(psi2)*Ntild(2)
T(2,2)=ccos(psi2)
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
end do
RR=matmul(M,T)
R=RR
do i=1,l
R=MATMUL(R,RR)
end do
if (yy.le.SLD) then
GG=(nn0*nn0*sin(ang)*sin(ang))
HH=sqrt(GG-(Qs*Qs))
ns=Ic*(-1)*HH
re=((n0*(R(1,1)+ns*R(1,2))-(R(2,1)+ns*R(2,2)))/&
((n0*(R(1,1)+ns*R(1,2))+(R(2,1)+(ns*R(2,2))))))
cre=CONJG(re)
ref=re*cre
write(*,*) Rs
end if
if (yy.gt.SLD) then
FF=asin((nn0/Qs)*sin(ang))

```

```

QQs=Qs*cos (FF)
ree=( (n0*(R(1,1)+QQs*R(1,2))-(R(2,1)+QQs*R(2,2))))/&
((n0*(R(1,1)+QQs*R(1,2))+(R(2,1)+(QQs*R(2,2))))))
cree=CONJG(ree)
ref=ree*cree
write(*,*) Rs
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
!rugosite gaussienne
FR=ref*exp(((8*pi**2*sigma**2*cos(ang)**2)/(lamd)**2))
write(*,*) FR
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
end do
end
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!

```

## Calcul R<sub>p</sub>

```

program Refp
implicit none
double precision::QQs,HH,GG,FF,dels,tranp
double precision::kappa,lamd,pi,refp,n0,nns,Qs,yy,FRp,z,a
double precision,dimension(2)::delt,delta,d,kapd,beta
double precision,dimension(2)::alpha,gama,deter,p,q,KLM,KLJ,KL
double precision,parameter::nn0=1.0d0
complex::ree,tr,cree,re,cre,ns,psi1,psi2,jh,ctr,trg
INTEGER::i,j,k,s
real ang,ALR,ALD,SLD,angs,agf
integer,parameter::l
complex,dimension(2)::psi,Ntild,Nd
complex,dimension(2,2)::M,T,R,RR
complex,parameter::Ic=(0,1)
double precision,parameter::sigma
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
kappa=2.d0*pi/lamd
do s=0,1000
yy=0.012052372*s
ang=(pi/180)*(90-yy)
n0=nn0/cos(ang)
Qs=(1-dels)
ALR=asin(Qs/nn0)
ALD=(180/pi)*ALR
SLD=90-ALD
do i=1,2
delt(i)=1-delta(i)
kapd(i)=kappa*d(i)
alpha(i)=((delt(i))**2)-((beta(i))**2)-(nn0**2*(sin(ang))**2)
gama(i)=delt(i)*beta(i)
deter(i)=sqrt((alpha(i))**2+4*(gama(i))**2)
P(i)=sqrt((alpha(i)+deter(i))/2)
q(i)=gama(i)/P(i)
KL(i)=(P(i)**2)+(q(i))**2
KLM(i)=P(i)*(1+((nn0**2*(sin(ang))**2)/KL(i)))
KLJ(i)=q(i)*(1-((nn0**2*(sin(ang))**2)/KL(i)))
Ntild(i)=KLM(i)-(Ic*KLJ(i))
! !!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
psi1=kapd(1)*(P(1)-Ic*q(1))
psi2=kapd(2)*(P(2)-Ic*q(2))

```

```

M(1,1)=ccos(psi1)
M(1,2)=Ic*csin(psi1)/Ntild(1)
M(2,1)=Ic*csin(psi1)*Ntild(1)
M(2,2)=ccos(psi1)
T(1,1)=ccos(psi2)
T(1,2)=Ic*csin(psi2)/Ntild(2)
T(2,1)=Ic*csin(psi2)*Ntild(2)
T(2,2)=ccos(psi2)
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
end do
RR=matmul(M,T)
R=RR
do i=1,l
R=MATMUL(R,RR)
end do
if (yy.le.SLD) then
GG=(nn0*nn0*sin(ang)*sin(ang))
HH=sqrt(GG-(Qs*Qs))
ns=Ic*(-1)*(Qs**2)/HH
re=((n0*(R(1,1)+ns*R(1,2))-(R(2,1)+ns*R(2,2)))/&
((n0*(R(1,1)+ns*R(1,2))+(R(2,1)+(ns*R(2,2)))))
cre=CONJG(re)
refp=re*cre
write(*,*) Rp
end if
if (yy.gt.SLD) then
FF=asin((nn0/Qs)*sin(ang))
QQs=Qs/cos(FF)
ree=((n0*(R(1,1)+QQs*R(1,2))-(R(2,1)+QQs*R(2,2)))/&
((n0*(R(1,1)+QQs*R(1,2))+(R(2,1)+(QQs*R(2,2)))))
cree=CONJG(ree)
refp=ree*cree
write(*,*) Rp
end if
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
!calcul rugosité
FRp=refp*exp(((8*pi**2*sigma**2*cos(ang)**2)/(lamd)**2))
write(*,*) FRp
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!
end do
end
!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!!

```

### Calcul R :

```

program reflexion
integer i
double precision,dimension(9000)::ref,refp,RT
open(unit=,file='',status='unknown')
open(unit=,file='',status='unknown')
open(unit=,file='',status='unknown')
do i=1,9000
read(*,*) Rs(i)
read(*,*) Rp(i)
R(i)=(Rs(i)+Rp(i))
yy=0.01*i
write(*,*) yy,R(i)/2
end do
end

```

## Annexe 6

### Analogie diffraction-réflexion

Il existe deux manières équivalentes de voir la diffraction des rayons X par une structure parfaitement périodique dues à Bragg et Von Laue. L'approche de Von Laue exploite le réseau réciproque, et celle de Bragg considère le cristal comme étant composé de plans d'ions parallèles, séparés d'une distance 'd<sub>0</sub>'. Les conditions pour obtenir un pic de diffraction sont les suivantes :

-Les rayons X doivent être réfléchis comme dans un miroir par les ions appartenant à chaque plan.

-Les rayons X réfléchis par des plans successifs doivent interférer de manière constructive.

Pour les rayons qui interfèrent de manière constructive, la différence de leurs chemins doit être égale à un nombre entier de la longueur d'onde, ce qui nous mène à la célèbre condition de Bragg. Pour Von Laue, le cristal est un ensemble d'ions (atomes) placés sur un réseau de Bravais pouvant réémettre le rayonnement incident dans toute les directions. Donc, l'intensité diffusée résultante sera non nulle uniquement dans certaines directions particulières définies par la loi de Bragg. Pour que le cristal diffracte le rayonnement incident dans la direction du faisceau diffusé, il faut que des interférences constructives se produisent entre les ondes diffusées, dans cette direction, par chaque motif ; la différence de marche calculée pour tout vecteur 'r' joignant deux noeuds du réseau est un multiple entier de la longueur d'onde. Il faut que les trois vecteurs de base a<sub>1</sub>, a<sub>2</sub>, a<sub>3</sub> qui définissent le réseau vérifient les conditions suivantes:

$$\begin{aligned} a_1 \cdot \frac{(k - k_0)}{k} &= h_1 \lambda \\ a_2 \cdot \frac{(k - k_0)}{k} &= h_2 \lambda \\ a_3 \cdot \frac{(k - k_0)}{k} &= h_3 \lambda \end{aligned}$$

Où h<sub>1</sub>, h<sub>2</sub>, h<sub>3</sub> sont des nombres entiers. Ce sont les équations de Laue qui peuvent être écrites sous la forme :

$$\frac{a_1}{h_1} \cdot K = 1$$

$$\frac{a_2}{h_2} \cdot K = 1$$

$$\frac{a_3}{h_3} \cdot K = 1$$

Les équations de Laue montrent que la diffraction est équivalente à la réflexion sélective par le miroir plan. On trouve l'expression habituelle de la loi de Bragg :  $2 d_{h_1 h_2 h_3} \cdot \sin \theta = \lambda$  où  $h_1, h_2$  et  $h_3$  sont les indices de Miller

Pour qu'il y ait diffraction d'un rayonnement incident de vecteur d'onde  $k_0$ , dans la direction définie par le vecteur d'onde  $k$ , par un cristal du réseau direct, il suffit que le vecteur de diffusion  $K = k - k_0$  soit égale à un vecteur du réseau réciproque.

Si on considère désormais que le cristal est tronqué de façon à faire apparaître une surface, Les pics de Bragg sont convolutés par des tiges de diffusions, perpendiculaires à la surface physique. L'espace réciproque est alors constitué de tiges de diffusion émanant des pics de Bragg qui se recouvrent. Il y a donc interférence et il est nécessaire de sommer toutes les contributions provenant de chaque pic de Bragg pour obtenir l'amplitude de diffusion par la surface.

De la même façon, dans le cas d'un adsorbat, il y a interférence entre les l'amplitude diffusée par l'adsorbat et la surface qui est la plupart du temps relaxée. Les effets d'interférence entre les ondes diffusées par le cristal et celles diffusées par la surface (relaxation, adsorbat...) permettent donc de remonter aux déplacements cristallographiques de surface ou encore aux sites d'adsorption.

Enfin dans le cas des nano structures déposées sur un substrat, l'approche est semblable. Il faut sommer les amplitudes de diffusion provenant de la surface et des nano structures. Cependant dans le cas où la croissance n'est pas pseudo morphé, par exemple lorsque le désaccord paramétrique est grand, les agrégats sont partiellement relaxés et il n'y a pas d'interférence. L'intensité totale est la somme de l'intensité diffusée par la surface et de celle diffusée par les agrégats. Si on fait une analogie entre les électrons dans un cristal et les vecteurs d'onde dans une structure multicouche nous concluons que la diffraction par un cristal peut être confondu avec le phénomène de réflexion par une multicouche.

Le vecteur de diffusion définit le facteur de diffusion atomique qui est un nombre sans dimension et défini comme étant, le rapport de l'amplitude de l'onde diffusée par un atome à celle de l'onde diffusée par un électron dans une même direction donnée.

$$f(K) = \int 4 \pi r^2 \rho(r) \frac{\sin(2 \pi K r)}{2 \pi K r} dr$$

Dans le calcul des facteurs de diffusion, des résonances se produisent au seuil d'absorption ce qui conduit à des termes correctifs à  $f_0$ , appelés facteur de dispersion soit :

$$f = f_0 + f' + if'' .$$