

Une méthode simple et précise pour la détermination de l'épaisseur de couches ultraminces à partir des mesures de réflectométrie des rayons X

**Elmaati Ech-Chamikh*, Abdelhadi Essafti, Youssef Ijdiyaou
et Mustapha Azizan**

*Laboratoire de physique du solide et des couches minces, Faculté des sciences Semlalia,
Université Cadi Ayyad, BP 2390, Marrakech 40000, Maroc*

(Reçu le 02 Juin 2006, accepté le 25 Septembre 2006)

* Correspondance, courriel : ech-chamikh@ucam.ac.ma

Résumé

Dans ce papier, nous proposons une méthode simple et précise pour déterminer l'épaisseur de couches ultraminces à partir des mesures de réflexion des rayons X. Pour des épaisseurs de l'ordre de quelques nanomètres à quelques centaines de nanomètres, le spectre de réflexion de rayons X présente des franges d'interférences. Les positions angulaires de ces franges sont liées à l'épaisseur e et à l'angle critique α_c (de réflexion totale) de la couche par l'intermédiaire de l'ordre d'interférence p . Nous proposons une méthode simple qui permet de déduire les valeurs correctes de p et par suite une valeur précise de e .

Mots-clés : *réflectométrie X, couche ultramine, épaisseur, densité du carbone amorphe.*

Abstract

A simple and accurate method for the determination of ultrathin films thickness from X-rays reflectometry measurements

In this paper, we present a simple and accurate method which allows to determine the thickness of ultrathin films from X-ray reflectivity measurements. For a thickness of some nanometres to some hundred nanometres, the X-ray reflectivity spectra exhibit interference fringes. The angular positions of these fringes are directly related to the

thickness and the density of the film through the order of interference p . We have used a simple procedure which allows to determine the correct p values, without any ambiguity, and then an accurate value of the film thickness.

Keywords : *X-ray reflectometry, ultrathin film, thickness, amorphous carbon density.*

1. Introduction

La détermination de l'épaisseur des couches minces présente un intérêt certain aussi bien sur le plan fondamental que sur le plan technologique. Parmi les différentes techniques couramment utilisées pour déduire ce paramètre, on peut citer les techniques de transmission optique [1-3], d'ellipsométrie [3-5] et de réflectométrie X [6-8]. La réflectométrie des rayons X est l'une des techniques non destructives qui permet de déterminer l'épaisseur d'une couche mince, déposée sur un substrat poli, à partir des franges d'interférences qui apparaissent sur le spectre de réflexion spéculaire des rayons X en fonction de l'angle d'incidence. L'une des difficultés qui peut être une source d'erreur lors de la détermination de cette épaisseur est la connaissance de l'ordre d'interférence des différentes franges. Dans ce papier, nous proposons une méthode simple qui permet de déterminer correctement l'ordre des franges et par suite une valeur précise de l'épaisseur de la couche analysée.

2. Conditions expérimentales

Les couches minces utilisées dans ce travail sont des couches de carbone amorphe ($a-C$) qui ont été déposées sur des substrats de verre, par pulvérisation cathodique radiofréquence (rf) à partir d'une cible de graphite de haute pureté [9].

Les spectres de réflexion spéculaire des rayons X en incidence très rasante (0 à 1 Deg) sont obtenus à l'aide d'un appareillage de diffraction des rayons X en incidence rasante dont la description a été détaillée dans des travaux antérieurs [10]. Nous rappelons brièvement ici que les rotations de l'échantillon et du détecteur (par pas de 0.0025 Deg) sont assurées à l'aide de deux moteurs pas à pas pilotés par un micro-ordinateur Macintosh qui assure également l'acquisition des données. La largeur angulaire du faisceau X incident est limitée à 0.02 Deg à l'aide d'une fente (en plomb), de largeur réglable, située entre le tube de rayons X et l'échantillon.

3. Résultats et discussion

La **Figure 1** montre les spectres de réflexion X pour deux couches de *a-C* d'épaisseurs différentes (dont l'une est très mince). Ces spectres présentent deux régions distinctes : la région du côté des grands angles d'incidence (0.3 à 0.6 Deg) où apparaissent les franges d'interférences et la région des petits angles d'incidence (0.15 à 0.3 Deg) caractérisée par la présence de deux descentes successives.

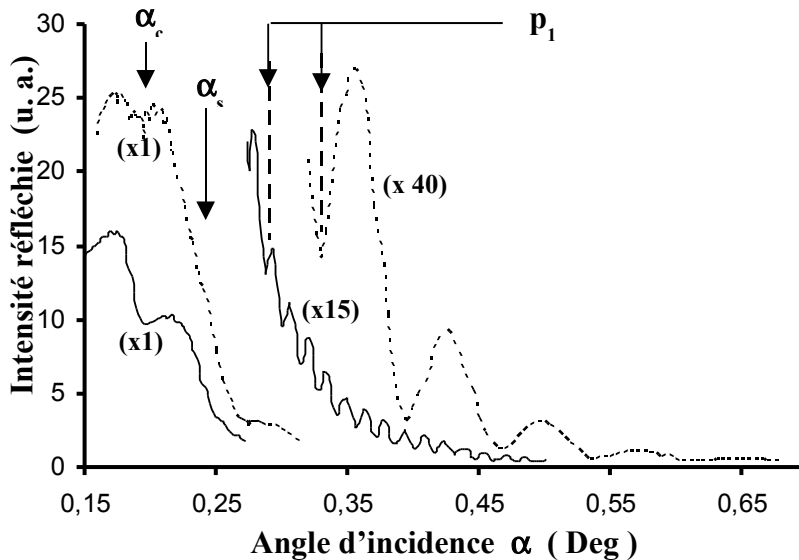


Figure 1 : Spectres de réflexion des rayons X de deux couches de carbone déposées sur des substrats de verre : (—) couche A plus épaisse, et (...) couche B moins épaisse. p_1 est l'ordre de la première frange prise en considération pour le calcul de l'épaisseur.

3-1. Densité des couches de *a-C*

L'angle correspondant au milieu de la descente (point d'inflexion), appelé angle critique α_c (angle en dessous duquel le faisceau incident est totalement réfléchi), est directement lié à la densité ρ du matériau analysé. Pour un matériau composé d'un seul élément, de faible numéro atomique Z (ce qui est le cas du carbone), et de masse atomique M , α_c s'exprime par la relation [7] :

$$\alpha_c = \sqrt{\frac{e^2 \lambda^2 NZ}{4\pi^2 \epsilon_0 mc^2 M}} \rho \quad (1)$$

où e et m sont respectivement la charge élémentaire et la masse de l'électron, λ est la longueur d'onde des rayons X, N est le nombre d'Avogadro et c est la célérité de la lumière.

La présence des deux descentes du côté des petits angles indique que les couches de a-C sont moins denses que les substrats de verre. En effet, dans le cas d'une couche moins dense que le substrat, l'angle critique de la couche α_{cc} est plus petit que celui du substrat α_{cs} ; ce qui fait que pour des angles d'incidence inférieurs à α_{cc} le faisceau incident est totalement réfléchi par la couche et pour des angles compris entre α_{cc} et α_{cs} le faisceau X est totalement réfléchi par le substrat.

La diminution de l'intensité réfléchie, lors du passage de la réflexion totale par la couche à la réflexion totale par le substrat, est due à l'absorption des rayons X par la couche [3,11]. Puisque cette absorption est d'autant plus importante que la couche est épaisse, la première descente est plus marquée dans le spectre de la couche la plus épaisse (**Figure 1**).

Les valeurs des angles critiques des couches de a-C et des substrats de verre déduites des deux descentes sont respectivement de 0.185 Deg et 0.235 Deg. Par suite, la densité des couches de a-C, déduite de la relation (1), est de l'ordre de 1.63 g/cm³.

3-2. Calcul des épaisseurs

La différence de marche géométrique δ entre deux rayons successivement réfléchis sur les dioptries air/couche et couche/substrat (**Figure 2**) est donnée par :

$$\begin{aligned} \delta &= 2nIJ - IH = 2ne \cos r = 2ne \sqrt{1 - \sin^2 r} \\ &= 2ne \sqrt{1 - \frac{\sin^2 i}{n^2}} = 2e \sqrt{n^2 - \sin^2 i} \end{aligned} \quad (2)$$

où n et e sont respectivement l'indice de réfraction et l'épaisseur de la couche et i et r sont respectivement l'angle d'incidence et l'angle de réfraction (par rapport à la normale) des rayons X sur le dioptre air/couche.

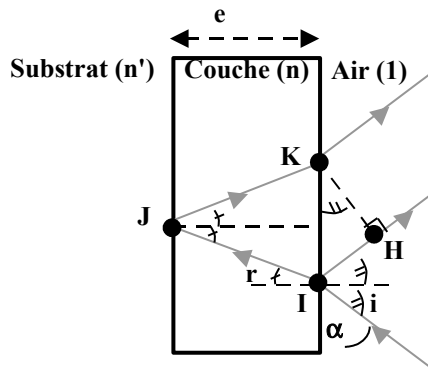


Figure 2 : Schéma illustrant les trajets de deux rayons réfléchis successivement sur les dioptries air/couche et couche/substrat

Si α est l'angle d'incidence par rapport à la surface de la couche et α_c l'angle critique de la couche, alors :

$$\sin i = \cos \alpha \quad \text{et} \quad n = \cos \alpha_c \tag{3}$$

La différence de marche géométrique δ s'exprime donc par :

$$\delta = 2e \sqrt{\cos^2 \alpha_c - \cos^2 \alpha} = 2e \sqrt{\sin^2 \alpha - \sin^2 \alpha_c} \tag{4}$$

Les positions α_p des extremums (maxima et minima) des franges d'interférences sont donc directement liées à l'épaisseur e de la couche (déposée sur le substrat épais) par la relation :

$$p = \frac{\delta}{\lambda} = \frac{2e}{\lambda} \sqrt{\sin^2 \alpha_p - \sin^2 \alpha_c} \tag{5}$$

où α_c est l'angle critique de la couche, λ est la longueur d'onde des rayons X et p l'ordre d'interférence. Dans le cas d'une couche moins dense que le substrat (ce qui est le cas de nos couches de a-C), p est entier pour les maxima et demi entier pour les minima. En effet, dans ce cas, les deux réflexions sur les dioptries air/couche et couche/substrat sont de même nature (indice du milieu d'incidence supérieur à celui du milieu d'émergence pour les deux dioptries); ce qui fait qu'il n'y a pas d'introduction de différence de marche physique $\frac{\lambda}{2}$.

Compte tenu du fait que α_p et α_c sont des angles petits, la relation (5) peut également s'écrire sous la forme suivante :

$$p = \frac{\delta}{\lambda} = \frac{2e}{\lambda} \sqrt{\alpha_p^2 - \alpha_c^2} \tag{6}$$

Si p_1 est l'ordre de la première frange observée sur le spectre, l'ordre p_m de la $m^{\text{ème}}$ frange (y compris les minima et les maxima) peut s'écrire :

$$p_m = p_1 + \frac{m-1}{2} \tag{7}$$

où m est un entier qui désigne le numéro de la frange. La relation (6) peut donc s'écrire :

$$\frac{m-1}{2} = \frac{2e}{\lambda} \sqrt{\alpha_m^2 - \alpha_c^2} - p_1 \tag{8}$$

où α_m est la position angulaire de la frange numéro m .

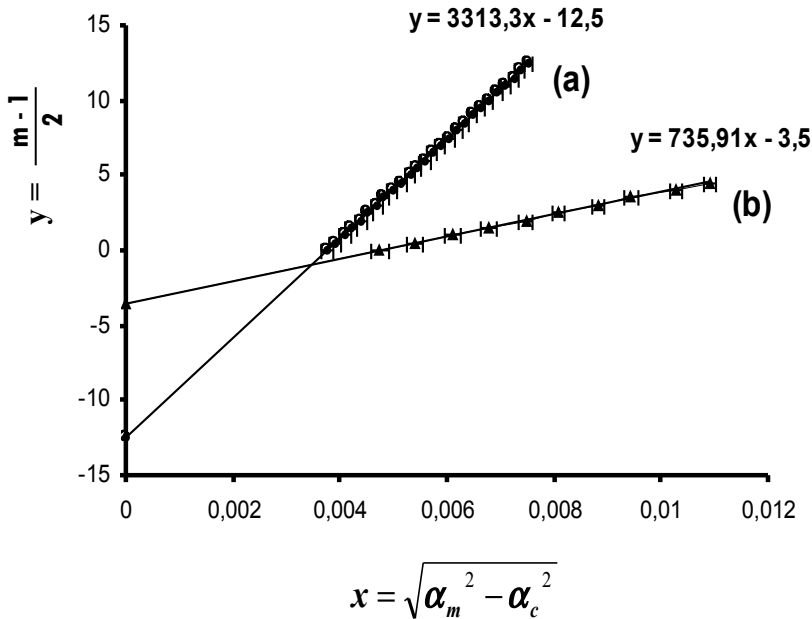


Figure 3 : Courbes de variation de $\frac{m-1}{2}$ en fonction de $\sqrt{\alpha_m^2 - \alpha_c^2}$ pour les spectres de la Figure 1 : (a) couche A plus épaisse (256 nm) et (b) couche B moins épaisse (56,7 nm).

La relation (8) montre que la courbe $y = \frac{m-1}{2}$ en fonction de $x = \sqrt{\alpha_m^2 - \alpha_c^2}$ est une droite qui coupe l'axe des x en p_1 avec une pente proportionnelle à e .

Dans une première étape on détermine la valeur correcte de p_1 , qui est un entier (si la première frange considérée est un maximum) ou un demi entier (si la première frange considérée est un minimum), à partir de la courbe linéaire $y(x)$. Ensuite, on retrace la droite $y(x)$ qui coupe l'axe des x à la valeur correcte de p_1 . Enfin, on calcule la valeur de e à partir de la pente de cette droite.

La **Figure 3** montre les courbes $y = \frac{m-1}{2}$ en fonction de $x = \sqrt{\alpha_m^2 - \alpha_c^2}$ obtenues à partir des spectres de la **Figure 1**.

Les épaisseurs e_A et e_B , des deux couches A et B, calculées à partir des pentes P_A et P_B des courbes linéaires de la **Figure 3**, sont données par :

$$e_A = \lambda \frac{P_A}{2} = 256nm \quad \text{et} \quad e_B = \lambda \frac{P_B}{2} = 56.7nm \tag{9}$$

Les erreurs Δe_A et Δe_B sur les épaisseurs, calculées à partir des erreurs ΔP_A et ΔP_B sur les pentes des courbes linéaires de la **Figure 2**, sont données par :

$$\Delta e_A = \lambda \frac{\Delta P_A}{2} \approx 1.5nm \quad \text{et} \quad \Delta e_B = \lambda \frac{\Delta P_B}{2} \approx 0.3nm \tag{10}$$

4. Conclusion

Nous avons utilisé une méthode simple, qui nous a permis de déterminer les épaisseurs des couches minces de a-C avec une très bonne précision. Cette méthode, qui utilise les positions des extremums des franges d'interférences et l'angle critique relevés sur le spectre de réflexion des rayons X, permet d'atteindre une précision de l'ordre de 0.5 %. Elle peut être étendue à la détermination des épaisseurs de couches ultraminces de divers matériaux.

Références

- [1] - Y. Laaziz, A. Bennouna, M.Y. Elazhari, J. Ramiro Bargaño, A. Outzourhit, N. Chahboun, E.L. Ameziane. *Thin Solid Films*, 303 (1997) 255
- [2] - M. Benmoussa, A. Outzourhit, A. Bennouna and E.L. Ameziane, *J. Phys. IV France*, 123 (2005) 41
- [3] - B. AKA, *Phys. Chem. News*, 01 (2001) 47
- [4] - A. Zimmer, N. Stein, C. Boulanger and L. Johann, *J. Phys. IV France*, 122 (2004) 87
- [5] - R. Saoudi, G. Hollinger, A. Gagnaire, P. Ferret and M. Pitaval, *J. Phys. III France*, 3 (1993) 1479
- [6] - P. Croce, L. Nevot et B. Pardo, *Nouv. Rev. d'optique Appliquée*, Vol. 3, N°1 (1972) 38.
- [7] - T. C. Huang, R. Gilles and G. Will, *Thin Solid Films*, 230 (1993) 99
- [8] - Y. Ijdiyaou, M. Y. El Azhari, K. Hafidi, M. Azizan, E. L. Ameziane and A. Outzourhit, *Moroccan Journal of Condensed Materials*, Vol.1, N°1 (1998) 110.
- [9] - E. Ech-chamikh, E. L. Ameziane, M. Azizan, A. Bennouna, J. L. Fave, J. Cernogora, Y. Bounouh and M. L. Thèye, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 33 (1994) 443.
- [10] - Y. Ijdiyaou, K. Hafidi, M. Azizan, E. L. Ameziane, G. Patrat, M. Brunel, L. Ortéga and T. A. Nguyen Tan, *Thin Solid Films*, 266 (1995) 224.
- [11] - E. Ech-chamikh, I. Aboudihab, M. Azizan, A. Essafti, and Y. Ijdiyaou, *Can. J. Phys*, 82 (2004) 75.