



HAL
open science

Étude de plasmas générés par laser, soumis à des champs magnétique et électrique. Utilisation possible en techniques de dépôts.

Clarisse Ducruet

► To cite this version:

Clarisse Ducruet. Étude de plasmas générés par laser, soumis à des champs magnétique et électrique. Utilisation possible en techniques de dépôts.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2003. Français. NNT: . tel-00003440v2

HAL Id: tel-00003440

<https://theses.hal.science/tel-00003440v2>

Submitted on 16 Nov 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble 1

(arrêté ministériel du 30 mars 1992)

Discipline : **Physique**

Présentée et soutenue publiquement

par :

Clarisse DUCRUET

le 10 Juillet 2003

**Étude de Plasmas Générés par Laser,
Soumis à des Champs Magnétique et Électrique.
Utilisation Possible en Techniques de Dépôts.**

Composition du jury :

Yves Arnal

Alain Catherinot *Rapporteur*

Jean-Pierre Contour *Président*

Dominique Givord *Directeur de thèse*

Wladimir Marine *Rapporteur*

Laurent Ranno

Thèse préparée au **Laboratoire Louis Néel**

et au **Consortium de Recherches pour l'Émergence de Technologies Avancées**

Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) - Grenoble

B.P. 166, 25 avenue des Martyrs, 38042 Grenoble Cedex 09

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse, **Dominique Givord**, de m'avoir proposé ce sujet. Je le remercie pour son enthousiasme, sa gentillesse et la confiance qu'il m'a accordée. Je te remercie de m'avoir initiée à ce monde passionnant qu'est la recherche et d'avoir toujours pris le temps de m'aider, même quand des milliers de kilomètres nous séparaient.

J'ai par ailleurs conscience des facilités financières dont j'ai bénéficié. Cela m'amène à préciser qu'une partie de ce travail a été effectuée dans le cadre du contrat de recherche européen HITEMAG.

Je souhaite remercier vivement les directeurs respectifs du Laboratoire Louis Néel et du CRETA, **Claudine Lacroix** et **Bernard Hébral**, de m'avoir accueillie chaleureusement au sein de leurs unités et de s'être toujours inquiétés de savoir si tout se passait bien.

Je remercie vivement **Alain Catherinot** (Université de Limoges - SPCTS) et **Wladimir Marine** (GPEC) d'avoir accepté de rapporter cette thèse, **Laurent Ranno** (Université Joseph Fourier - Laboratoire Louis Néel) et **Yves Arnal** (LEMD) de m'avoir fait l'honneur de participer à mon jury et **Jean-Pierre Contour** (Unité Mixte de Physique CNRS / Thalès) de l'avoir présidé. Un merci supplémentaire à **Yves** pour ses encouragements.

J'ai eu la chance de collaborer plusieurs mois avec **Oliver Gutfleisch** (IFW - Dresde) et **Nikolaï Kornilov** (MISA - Moscou). Un grand merci pour votre patience, votre disponibilité, votre efficacité et votre gentillesse !

J'associe à ces remerciements **Catherine Bordel** (Université de Rouen - GPM) avec qui nous avons fait des essais de dépôts sur pointe de sonde atomique tomographique. Malheureusement, nous n'avons pas encore abouti (mais on sait pourquoi, c'est déjà beaucoup !), j'espère que dans le futur, cela pourra continuer. Double merci, **Cathy**, de ta présence le jour de la soutenance.

Vers la fin de cette thèse, nous avons entrepris des dépôts sur des substrats pré-gravés. Je n'aurais jamais eu le temps de les élaborer seule. Je remercie donc vivement **Claire Baraduc** (SPINTEC) pour le lift-off. Nous avons également entrepris une collaboration avec **Olivier Bourgeois**, **Thierry Fournier** et **Jacques Chaussy** (CRTBT). Ce fut fructueux, d'autant plus qu'elle va continuer. Je les en remercie donc sincèrement. Merci à **Frédéric Ayela** (CRTBT) pour les échantillons pirates.

Je tiens à remercier sincèrement les pôles techniques du Laboratoire Louis Néel, sans qui ce travail n'aurait jamais abouti, pour la construction de la manip et tous les petits services rendus (qui deviennent vite très grands ...). Un énorme merci donc à ceux sans qui ce laboratoire ne serait pas ce qu'il est : **Laurent Del-Rey**, **Valérie Santonacci** (bonne chance pour la nouvelle chambre !), **Serge Biston**, **Éric Eyraud**, **Didier Dufeu**, **Richard Haëttel**, **Jean-Sébastien Pelle**, **Jean-Claude Genna**, **Jean-Claude Tissot**, **David Barral** et **Michel Bouvier** (heureuse retraite !). Merci beaucoup à **Annick Liénard** pour le MEB et l'AFM, à **Jean-Claude Cotillard** pour le programme.

Ma sympathie et mon amitié vont à **Philippe David**. Merci d'avoir suivi tout ça de près, merci pour tes judicieux conseils et ta gentillesse infinie.

Il faudra aussi un jour que **Véronique Richard-Fauvel**, **Sabine Domingues** et **Éliane Forêt** (Laboratoire Louis Néel) sans oublier la très célèbre **Marie-Do Bernardinis** (appelée aussi

« Chef je ne suis pas chef », CRETA) m'expliquent comment elles font pour être aussi patientes. Merci à elles. C'est incroyable le nombre de problèmes qu'elles sont capables de résoudre avec le sourire !

Un immense merci à **Robert Tournier** (Laboratoire de Cristallographie - LdC), qui m'a beaucoup aidée alors que je cherchais un financement de thèse. J'ai eu l'occasion de travailler avec lui quelques mois en arrivant ici et je dois dire que sa fougue, son enthousiasme et son intuition sont particulièrement contagieux. Je lui souhaite par ailleurs beaucoup de courage.

Je n'oublie pas non plus l'ensemble du Laboratoire Louis Néel, particulièrement ceux qui ont, à un moment ou à un autre, passé du temps avec moi. Leur soutien moral ou scientifique a été précieux. Cela me permet de remercier une seconde fois **Laurent Ranno**, vraiment tu ne comptes pas ton temps et encore merci pour ta relecture minutieuse et pertinente de ce manuscrit. Un merci chaleureux supplémentaire à **Nora Dempsey**, **Olivier Fruchart**, **Jean Laforest**, **Jean-Louis Porteseil**, **Jean Voiron** et **Wolfgang Wernsdorfer**.

Pardon à **Orphée Cugat** (LEG) pour les aimants en couches épaisses ... un jour sûrement !

Quand on travaille à cheval entre deux laboratoires, on a deux fois plus de gens à remercier. Alors j'en viens maintenant à ceux qui créent au CRETA, unité melting-pot, un environnement chaleureux et amical. Merci à vous qui m'avez aidés au quotidien et qui m'avez prodigués autant de réconfortants encouragements que de judicieux conseils : **Xavier Chaud** et **Sophie Rivoirard** (CRETA), **Éric Beaugnon** et **Daniel Bourgault** (LdC). Merci aussi à **Jean-Louis Soubeyrou** (LdC) et **Catherine Villard** (CRTBT). J'associe à ces remerciements **Laureline Porcar** et **André Sulpice** (CRTBT), **Daniel Fruchart** (LdC), **Jacques Pelletier** (LEMD) et **Pascale Gillon** (EPM).

Sans oublier tous ceux de passage, qui font beaucoup, à tout point de vue, dans la vie d'un labo. Ils avaient plus que leur place sur le Polygone, sont partis sous d'autres cieux ... ou ne vont pas tarder à le faire : **Didier Buzon**, **Emmanuel Favre-Nicolin**, **Emmanuel Flahaut**, **Alexandre Giguère**, **Romain Giraud**, **Nguyen Hoang Hai**, **Christophe Peroz**, **Ioana Popa** et **Christophe Thirion**. Je n'oublie pas, bien sûr, **Franck Gaucherand**, **Sybille Pavard**, **Dirk Isfort** et **Églantine Meunier**. Je suis contente d'avoir partagé des moments agréables avec vous. Votre présence dans des moments moins amusants a également été réconfortante. Bonne chance ! J'ai une pensée particulière pour nos « successeurs », **Florent Ingwiller** et **Raluca Tiron**.

J'ai également eu la chance de partager ma salle de manip avec **Alain Benoît** et **Henri Rodenas** (CRTBT). Et même si nous travaillons dans des domaines bien différents, je les remercie de leur aide, de leur gentillesse et surtout de leurs sourires. Merci encore, **Alain**, pour le vase d'azote et les petits trucs de cryogénistes. On n'imagine pas ce qu'on peut faire avec un simple morceau de scotch !

Une partie du bâti d'ablation a été conçue en collaboration avec le SERAS. Je suis en particulier reconnaissante à **Marc Deleglise** et **Sylvain Cuccaro**. Et bien entendu à **François Rebouillat**.

Je tiens aussi à remercier **Jean-Pierre Nozières** (Laboratoire Louis Néel puis SPINTEC) pour ses éclaircissements, ses conseils et son aide pour le futur, car le grand problème reste, malheureusement, de trouver un autre travail.

Merci aussi à **Jean-Louis Tholence** (LEPES), mon parrain de thèse, pour ses conseils, son calme et sa gentillesse. C'est toujours rassérénant de discuter avec lui !

Ainsi, j'ai pu, au cours de ces années, bénéficier d'une diversité de compétences inouïe grâce aux différents lieux de travail et je tiens à remercier tous ceux qui m'ont aidée. Mention spéciale pour **les services techniques du CRTBT** (sauf pour la micro-soudeuse, c'est un appareil trop sournois !). J'ai eu une bobine bien exigeante au niveau hélium, merci **au personnel du Liquéfacteur** de m'en avoir toujours fourni dans les cas extrêmes.

Je me suis toujours promis, si j'arrivais jusque là, d'associer à ces remerciements **Daniel Décamp** et **Pierre Salati** (Université de Savoie - LAPP & LAPTH), qui sont les meilleurs profs que je n'ai jamais eus. Leur passion pour la physique était communicative et ils sont probablement à l'origine de ma « vocation ».

Ce mémoire est bien trop sérieux pour cela mais je tiens enfin à remercier **ma famille** et **mes amis** pour leur soutien inconditionnel pendant toutes ces années. Mille mercis d'être venus le jour de la soutenance.

Enfin, c'est du fond du cœur que je remercie **Frédéric** pour sa compréhension, sa patience et bien d'autres choses. Merci d'avoir affronté avec moi toutes les difficultés et les doutes, particulièrement pendant les mois de rédaction. Merci pour tous les sacrifices. J'espère que je pourrai, un jour, te le rendre.

SOMMAIRE

INTRODUCTION

CHAPITRE 1

DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL DE DÉPÔT LASER PULSÉ SOUS CHAMP MAGNÉTIQUE

| | | |
|------------|--|-----------|
| I | LE DÉPÔT LASER PULSÉ | 9 |
| I.1 | POURQUOI LE DÉPÔT LASER PULSÉ ? | 9 |
| I.2 | POURQUOI UN CHAMP MAGNÉTIQUE ? | 10 |
| II | DÉPÔT LASER PULSÉ AU LABORATOIRE LOUIS NÉEL | 11 |
| III | NOTRE MONTAGE EXPÉRIMENTAL | 12 |
| III.1 | ENCEINTE DE DÉPÔT ET SAS | 13 |
| III.2 | PORTE-CIBLE | 15 |
| III.3 | PORTE-SUBSTRAT | 16 |
| III.4 | TRANSLATION-ROTATION DU PORTE-SUBSTRAT | 18 |
| III.5 | LASER ET OPTIQUE | 19 |
| III.5.1 | LE LASER | 19 |
| III.5.2 | LES OPTIQUES | 20 |
| III.5.3 | REMARQUE SUR LA DENSITÉ D'ÉNERGIE INCIDENTE SUR LA CIBLE | 22 |
| III.6 | AIMANT SUPRACONDUCTEUR | 22 |
| III.7 | PILOTAGE DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL | 24 |
| III.7.1 | SYNOPTIQUE DU PILOTAGE | 24 |
| III.7.2 | MENU GÉNÉRAL DE PILOTAGE ET DESCRIPTION DU PROGRAMME | 25 |
| IV | CIBLE, SUBSTRAT, ET LEURS PRÉPARATIONS | 26 |
| IV.1 | LA CIBLE | 26 |
| IV.2 | LE SUBSTRAT | 26 |
| V | RÉFÉRENCES | 27 |

CHAPITRE 2

PLASMAS GÉNÉRÉS PAR LASER

| | | |
|-----------|---|-----------|
| I | ABLATION LASER ET FORMATION DU PLASMA | 33 |
| I.1 | MÉCANISMES FONDAMENTAUX D'ÉVAPORATION LASER | 33 |
| I.2 | FORMATION DU PLASMA | 34 |
| I.3 | EXPANSION DU PLASMA | 37 |
| I.4 | RECOMBINAISON | 39 |
| II | PROPRIÉTÉS CARACTÉRISTIQUES DES PLASMAS OBTENUS PAR ABLATION LASER | 41 |
| II.1 | LONGUEUR DE DEBYE | 42 |
| II.2 | PLASMA STATIQUE VERSUS PLASMA EN EXPANSION | 43 |
| II.3 | TAUX D'ABLATION | 44 |
| II.4 | TAUX D'IONISATION ET FRACTION IONIQUE | 44 |
| II.5 | DENSITÉ DU PLASMA | 45 |

| | | |
|------------|------------------------------------|-----------|
| II.6 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 46 |
| II.7 | ÉNERGIE IONIQUE | 47 |
| III | PLASMAS ET CHAMP MAGNÉTIQUE | 49 |
| IV | RÉFÉRENCES | 49 |

CHAPITRE 3

CARACTÉRISATION, EN CHAMP MAGNÉTIQUE NUL,

DES PLASMAS DE DIVERS ÉLÉMENTS

| | | |
|------------|--|-----------|
| I | CARACTÉRISATION D'UN PLASMA PAR SONDE DE LANGMUIR | 55 |
| I.1 | GAINÉ DE PLASMA | 55 |
| I.1.1 | CRÉATION DE LA GAINÉ AU VOISINAGE D'UNE PAROI | 55 |
| I.1.2 | ÉPAISSEUR DE GAINÉ | 56 |
| I.2 | CARACTÉRISATION D'UN PLASMA STATIQUE PAR SONDE DE LANGMUIR | 57 |
| I.3 | CARACTÉRISATION D'UN PLASMA EN EXPANSION PAR UNE SONDE DE LANGMUIR EN MODE TEMPS DE VOL | 61 |
| I.4 | ÉLECTRONS SECONDAIRES | 62 |
| II | NOTRE ARRANGEMENT EXPÉRIMENTAL | 63 |
| III | TRAITEMENTS DES DONNÉES OBTENUES PAR SONDE DE LANGMUIR | 66 |
| III.1 | OBSERVATIONS QUALITATIVES | 66 |
| III.2 | ÉVALUATION DE LA TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE T_e | 69 |
| III.3 | ÉVALUATION DU NOMBRE DE PARTICULES PAR UNITÉ DE VOLUME | 73 |
| III.3.1 | DENSITÉ IONIQUE | 73 |
| III.3.2 | REMARQUE SUR LA DENSITÉ ÉLECTRONIQUE ET LE POTENTIEL PLASMA | 73 |
| III.4 | DES COURANTS EN FONCTION DU TEMPS AUX DENSITÉS IONIQUES EN FONCTION DE L'ÉNERGIE | 74 |
| IV | ÉTUDES EXPÉRIMENTALES DES PLASMAS OBTENUS | 76 |
| IV.1 | PARAMÈTRES PHYSIQUES CALCULÉS DES PLASMAS | 76 |
| IV.2 | RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX | 77 |
| IV.2.1 | REMARQUES PRÉLIMINAIRES | 77 |
| IV.2.2 | DENSITÉ IONIQUE | 79 |
| IV.2.3 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 82 |
| IV.2.4 | STRUCTURE À TEMPS COURTS | 84 |
| IV.3 | ANALYSE ET DISCUSSION | 85 |
| IV.3.1 | TAUX D'ABLATION | 85 |
| IV.3.2 | EFFET DE LA DISTANCE CIBLE-SUBSTRAT | 88 |
| IV.3.3 | DE L'ÉNERGIE DES IONS À LA TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 89 |
| IV.3.4 | ÉNERGIE CINÉTIQUE DES IONS ET TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE : D'UN ÉLÉMENT À L'AUTRE, ET EN FONCTION DE LA FLUENCE | 92 |
| IV.3.5 | STRUCTURES À TEMPS COURTS | 93 |
| IV.3.6 | TEMPÉRATURES ÉLECTRONIQUES | 93 |
| IV.3.6.1 | Une évaluation de la constante adiabatique γ | 93 |
| IV.3.6.2 | Lien entre $n_i(t)$ et $T_e(t)$ mesurés à la sonde de Langmuir | 94 |
| IV.3.7 | DISTRIBUTIONS ANGULAIRES | 95 |
| IV.3.7.1 | Paramètres et arrangements expérimentaux | 95 |
| IV.3.7.2 | Résultats et analyse | 96 |
| V | CONCLUSION | 98 |
| VI | RÉFÉRENCES | 98 |

ANALYSE DE L'INFLUENCE D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE

SUR DES PLASMAS DE DIVERS ÉLÉMENTS

| | | |
|------------|---|------------|
| I | CONFINEMENT PAR LE CHAMP MAGNÉTIQUE | 103 |
| II | CARACTÉRISATION DU PLASMA À PARTIR DU TAUX DE DÉPÔT | 105 |
| II.1 | OBSERVATIONS QUALITATIVES | 105 |
| II.2 | MESURES DU TAUX DE DÉPÔT | 106 |
| II.3 | TAUX DE DÉPÔT | 107 |
| III | CARACTÉRISATION DES PLASMAS PAR SONDE DE LANGMUIR EN MODE TEMPS DE VOL | 109 |
| III.1 | GÉNÉRALITÉS : SONDE DE LANGMUIR ET CHAMP MAGNÉTIQUE | 109 |
| III.2 | MÉCANISME DE COLLECTION SOUS CHAMP MAGNÉTIQUE | 109 |
| III.2.1 | COLLECTION EN TENSION NÉGATIVE | 110 |
| III.2.2 | COLLECTION EN TENSION POSITIVE | 111 |
| III.3 | RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX | 112 |
| III.3.1 | CONDITIONS EXPÉRIMENTALES | 112 |
| III.3.2 | SIGNAUX $I(t)$ ET $I(V_b)$ | 112 |
| III.3.3 | POTENTIEL PLASMA | 120 |
| III.3.4 | COURANT IONIQUE À SATURATION ET DENSITÉS IONIQUES | 121 |
| IV | ANALYSE ET DISCUSSION | 124 |
| IV.1 | DU COURANT IONIQUE DE SATURATION AU TAUX D'ABLATION PAR IMPULSION | 124 |
| IV.2 | POTENTIEL PLASMA | 126 |
| IV.3 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE, ÉNERGIE MOYENNE DES IONS ET TEMPÉRATURE INITIALE DU PLASMA EN CHAMP MAGNÉTIQUE | 126 |
| IV.3.1 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 126 |
| IV.3.2 | LIENS ENTRE DENSITÉS DE COURANT EN CHAMP NUL ET SOUS CHAMP MAGNÉTIQUE | 127 |
| IV.3.3 | LIENS ENTRE DENSITÉS DE COURANT EN FONCTION DU TEMPS ET DENSITÉS EN FONCTION DE L'ÉNERGIE | 129 |
| IV.4 | RECOMBINAISON ET FRACTION IONIQUE INITIALE | 132 |
| V | CONCLUSION | 138 |
| VI | RÉFÉRENCES | 138 |

CHAPITRE 5

DU PLASMA AU DÉPÔT

ANNEXE CONFIDENTIELLE

139 à 162

CONCLUSION

ANNEXE A

DONNÉES MESURÉES PAR LA SONDÉ DE LANGMUIR EN CHAMP MAGNÉTIQUE NUL

ANNEXE B

TECHNIQUES DE CARACTÉRISATION STRUCTURALE ET MAGNÉTIQUE

INTRODUCTION

Le courant principal de développement actuel du magnétisme concerne les systèmes en couches ou bien microstructurés ou nanostructurés. Les propriétés originales des matériaux obtenus sont associées à la réduction des dimensions caractéristiques jusqu'à des valeurs qui sont de l'ordre de grandeur de la portée des interactions en jeu (échange, champ électrique cristallin ou dipolaire). Du point de vue des applications, la taille réduite des objets ainsi préparés peut permettre leur insertion au sein de micro ou nanosystèmes.

Les méthodes d'évaporation telle que l'épitanie par jet moléculaire sont utilisées en général pour la préparation de films d'éléments purs de très haute qualité. Une limitation de ces techniques résulte du fait que les propriétés magnétiques qui intéressent la recherche et les applications sont extrêmement diverses, et les matériaux magnétiques porteurs de ces propriétés sont constitués de plusieurs éléments, qu'ils soient sous forme de multicouches ou d'alliages ou de composés. La co-évaporation à partir de plusieurs cellules peut permettre la préparation de tels systèmes. Cependant, les taux de dépôt sont limités à une valeur de quelques $nm s^{-1}$. De plus, le contrôle de la stœchiométrie repose sur celui des taux d'évaporation des diverses cellules d'effusion et il est difficilement réalisable à l'échelle industrielle. Pour ces raisons, les matériaux magnétiques en films utilisés en particulier en micro-électronique sont le plus souvent préparés par pulvérisation cathodique. Cette méthode permet d'atteindre des taux de dépôt de l'ordre de $1 \mu m min^{-1}$ et elle est bien adaptée au dépôt d'empilements ou d'alliages complexes.

Le dépôt laser pulsé (PLD en anglais) est une autre méthode de dépôt qui s'est développée depuis une dizaine d'années surtout en laboratoire, et plus spécifiquement pour la préparation de films d'oxydes, supraconducteurs ou manganites magnétiques. Un faisceau laser pulsé irradie une cible pendant un temps typique de $10 ns$. L'énergie de chaque impulsion est suffisante pour chauffer au-delà de la température de fusion la zone de matière irradiée. Du fait de l'extrême rapidité du phénomène, l'évaporation est congruente et la méthode est donc particulièrement adaptée à la préparation de matériaux constitués d'éléments divers.

Au laboratoire Louis Néel, la méthode a été utilisée dans une approche originale pour le dépôt de films magnétiques ultra-minces. Les travaux alors réalisés ont permis de révéler que la plume de matière évaporée était très fortement ionisée. Dans le cadre d'études antérieures à mon propre travail, l'effet d'un champ magnétique sur ce plasma a été étudié, révélant la possibilité de confiner fortement la plume de matière évaporée et augmenter par là le taux de dépôt de façon très substantielle. Dans ces études, plusieurs aspects des mécanismes d'interaction entre la plume en expansion et le champ magnétique sont restés

incompris. On peut citer les difficultés rencontrées à dévier la totalité de la plume ou le fait que le taux de dépôt décroît avec la distance à la cible alors que si l'expansion est supprimée, on s'attendrait à ce que le taux de dépôt soit constant.

L'objectif initial de mon travail de thèse était de répondre à ces questions puis se tourner le plus vite possible vers la préparation de matériaux magnétiques par dépôt laser pulsé sous champ magnétique. Mais j'ai mis à jour progressivement un ensemble de comportements originaux dont l'interprétation a nécessité d'approfondir l'analyse des plasmas générés par laser en champ magnétique nul et d'étudier de façon approfondie les effets d'un champ magnétique. En même temps, la meilleure compréhension atteinte des propriétés des plasmas nous a suggéré l'association d'un champ électrique au champ magnétique pour agir de façon encore mieux contrôlée sur la plume et le dépôt. En fin de compte, ces études ont concerné la quasi totalité de mon travail et la préparation de matériaux magnétiques, de type *Fe-Pt*, que j'ai réalisée à une période intermédiaire n'en a constitué qu'une partie marginale.

Dans le premier chapitre de ce manuscrit, je décris les spécificités du dépôt laser pulsé, je résume les développements principaux réalisés au Laboratoire Louis Néel, je décris le montage expérimental que j'ai développé en vue de réaliser des dépôts sous champ magnétique intense, à l'aide d'une bobine supraconductrice.

Le Chapitre 2 est de caractère bibliographique. Je décris les mécanismes principaux en jeu lors de l'ablation et de l'expansion. Je décris les études antérieures qui ont concernées d'une part la caractérisation de plasmas générés par laser par sonde de Langmuir, d'autre part l'application d'un champ magnétique dans le cadre d'expériences de dépôt laser pulsé.

Le Chapitre 3 est consacré à la caractérisation, en champ magnétique nul, des plasmas générés par laser de divers éléments. Je décris l'utilisation spécifique d'une sonde de Langmuir pour la caractérisation de tels plasmas et les traitements de données requis. Je caractérise les plasmas de cinq éléments différents (*Al*, *Fe*, *Cu*, *Mo* et *Pt*), les études les plus approfondies portant sur *Fe* et *Pt*. Je discute les comportements observés sur la base des modèles théoriques d'ablation et d'expansion.

Le Chapitre 4 concerne la caractérisation de plasmas sous champ magnétique. L'utilisation de champs jusqu'à 5 T modifie profondément le mécanisme d'expansion. Je montre que le mécanisme de collection d'une sonde de Langmuir est lui aussi profondément modifié par le champ mais qu'en fin de compte des informations importantes sur le plasma peuvent être obtenues, comme en champ nul. Je caractérise les comportements observés, en utilisant en particulier une telle sonde.

Au Chapitre 5, en annexe confidentielle, je propose une approche originale de préparation de dépôts structurés, à partir d'un plasma généré par laser. Je présente des résultats préliminaires qui établissent l'intérêt de cette approche.

CHAPITRE 1 :

DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL DE DÉPÔT LASER PULSÉ SOUS CHAMP MAGNÉTIQUE

| | | |
|--------------|--|-----------|
| I | LE DÉPÔT LASER PULSÉ | 9 |
| I.1 | POURQUOI LE DÉPÔT LASER PULSÉ ? | 9 |
| I.2 | POURQUOI UN CHAMP MAGNÉTIQUE ? | 10 |
| II | DÉPÔT LASER PULSÉ AU LABORATOIRE LOUIS NÉEL | 11 |
| III | NOTRE MONTAGE EXPÉRIMENTAL | 12 |
| III.1 | ENCEINTE DE DÉPÔT ET SAS | 13 |
| III.2 | PORTE-CIBLE | 15 |
| III.3 | PORTE-SUBSTRAT | 16 |
| III.4 | TRANSLATION-ROTATION DU PORTE-SUBSTRAT | 18 |
| III.5 | LASER ET OPTIQUE | 19 |
| III.5.1 | LE LASER | 19 |
| III.5.2 | LES OPTIQUES | 20 |
| III.5.3 | REMARQUE SUR LA DENSITÉ D'ÉNERGIE INCIDENTE SUR LA CIBLE | 22 |
| III.6 | AIMANT SUPRACONDUCTEUR | 22 |
| III.7 | PILOTAGE DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL | 24 |
| III.7.1 | SYNOPTIQUE DU PILOTAGE | 24 |
| III.7.2 | MENU GÉNÉRAL DE PILOTAGE ET DESCRIPTION DU PROGRAMME | 25 |
| IV | CIBLE, SUBSTRAT, ET LEURS PRÉPARATIONS | 26 |
| IV.1 | LA CIBLE | 26 |
| IV.2 | LE SUBSTRAT | 26 |
| V | RÉFÉRENCES | 27 |

Une partie de mon travail de thèse a porté sur le développement d'un montage expérimental de Dépôt Laser Pulsé¹ sous champ magnétique. Pour concevoir ce montage, j'ai pu tirer profit des enseignements obtenus par C. de Julián Fernández sur un montage de conception plus simple [1]. Alors que dans ce montage le champ magnétique était généré par des aimants permanents, j'ai conçu une chambre de dépôt qui s'insère dans le trou de champ d'une bobine supraconductrice. Les avantages résultants sont la flexibilité de variation du champ magnétique et la possibilité d'atteindre des valeurs d'inductions magnétiques, jusqu'à 5 T.

Dans la première partie de ce chapitre, j'explique quelles sont les propriétés caractéristiques principales de cette technique de dépôt, puis les raisons de l'application d'un champ magnétique. Les développements expérimentaux en PLD réalisés au Laboratoire Louis Néel depuis plus de dix ans sont résumés dans la seconde partie de ce chapitre. Dans la troisième partie, les différents éléments du montage, conçu et construit avec l'aide des équipes techniques du Laboratoire Louis Néel et du SERAS, sont décrits.

I LE DÉPÔT LASER PULSÉ

I.1 Pourquoi le dépôt laser pulsé ?

Le rayonnement fourni par un laser à rubis a été utilisé pour la première fois en 1965, comme source de vaporisation de matière et de dépôt sous vide de composés semiconducteurs [2]. La technique de dépôt laser pulsé s'est beaucoup développée depuis 1987 comme méthode de préparation de films supraconducteurs à haute température critique [3] [4]. Dans le domaine des films métalliques, le dépôt laser pulsé est largement supplanté par les techniques d'évaporation, telle que l'épitaxie par jets moléculaires, qui permettent d'obtenir des films de systèmes variés de haute qualité cristalline ou par les techniques de pulvérisation cathodique qui permettent d'atteindre un taux de dépôt élevé.

La technique de dépôt laser pulsé consiste à focaliser un faisceau laser de haute énergie sur une « cible ». L'énergie lumineuse est convertie en énergie thermique à la surface de la cible. Une fine couche se liquéfie et se vaporise de façon quasi-instantanée. Dans le cas des métaux, l'interaction du faisceau laser avec les espèces évaporées conduit à la formation d'un plasma. Le flux de matière est recueilli sur un substrat placé en regard de la cible. Les dépôts

¹ On utilisera souvent l'acronyme « PLD » dans la suite de ce manuscrit : « Pulsed Laser Deposition ».

sont souvent effectués sous ultra-vide afin de limiter la pollution des films par les gaz résiduels.

Le dépôt laser pulsé présente un certain nombre d'avantages par rapport aux autres techniques de dépôt. Un premier avantage réside dans la facilité de mise en œuvre. La source de vaporisation est en effet située à l'extérieur du bâti d'ablation, contrairement au cas des techniques de dépôt mettant en œuvre des faisceaux d'ions et d'électrons ou un gaz de pulvérisation. Mais l'argument prépondérant dans le choix de la méthode est le fait que la composition de la cible est conservée dans le plasma, ouvrant ainsi la voie à la préparation de films de composés.

Par ailleurs, les espèces évaporées, chauffées par le faisceau après évaporation, peuvent atteindre de très hautes énergies, jusqu'à des dizaines et même des centaines d'électron-Volts ($1 eV = 1.16 \times 10^4 K$). Dans les premiers stades de la croissance, les premiers atomes qui arrivent sur le substrat s'y adsorbent et jouent le rôle de sites de nucléation, ce qui favorise la croissance initiale de couches épitaxiées ultra-plates [5]. À l'opposé, ce phénomène d'implantation peut induire la formation de défauts de surface et des processus de repulvérisation peuvent exister [6] [7] [8]. La grande énergie des atomes incidents sur le substrat peut entraîner aussi un mélange aux interfaces pour des multicouches de matériaux différents [9].

On doit noter, enfin, un défaut très spécifique au dépôt laser pulsé, qui est la production de gouttelettes microniques émises de la cible. Les films préparés, particulièrement dans le cas des métaux, sont souvent contaminés par ces gouttelettes qui peuvent représenter une fraction non négligeable de l'ensemble de la matière évaporée [10].

I.2 Pourquoi un champ magnétique ?

Une technique de dépôt présentant des points communs avec le dépôt laser pulsé est le dépôt par arc plasma. Dans ce cas aussi des particules sont éjectées. Pour les éliminer, plusieurs auteurs [11] [12] ont proposé une approche qui exploite le fait que la majorité des espèces atomiques évaporées sont des ions. La cible est positionnée près de l'entrée d'une bobine de champ magnétique ayant la forme d'une portion de tore. Lors de l'expansion du plasma, sous l'effet de la force de Lorentz, les ions suivent les lignes de champ courbées de la bobine, pour atteindre un substrat placé à la sortie du solénoïde. Les gouttelettes qui n'interagissent pas avec le champ magnétique, suivent des trajectoires rectilignes depuis la

cible et sont éliminées complètement des films. Jordan *et al.* [13] ont appliqué la même approche au dépôt laser pulsé.

Dans ce type de montage, le champ, $\mu_0 H$, de la bobine torique est de l'ordre de $0.05 T$. Les ions de grande énergie ne sont pas confinés de façon efficace, le rendement global est typiquement de 25 %. Pour résoudre ce problème, de Julián *et al.* [1] ont utilisé un arrangement dans lequel les ions évaporés sont, dans un premier temps, confinés par un champ magnétique parallèle à la direction d'expansion du plasma qui travaille contre la dispersion angulaire de la matière évaporée. Dans un second temps, la plume est déviée par un champ magnétique perpendiculaire à la direction d'expansion. Le substrat est orienté perpendiculairement à la cible, les ions s'y déposent quelle que soit leur énergie, mais il ne peut être atteint directement depuis la cible, garantissant ainsi que les films déposés sont exempts de gouttelettes.

II DÉPÔT LASER PULSÉ AU LABORATOIRE LOUIS NÉEL

Initialement, le dépôt laser pulsé a été développé au Laboratoire Louis Néel pour la fabrication de couches magnétiques ultra-minces. Les raisons principales du choix de cette technique alors peu utilisée, était la conservation de la stœchiométrie de la couche déposée, la possibilité d'élaborer des matériaux de nature variée, la compatibilité ultra-vide, sans oublier la souplesse d'utilisation, un élément important pour le travail de recherche.

La chambre de dépôt construite par RIBER est encore en fonctionnement. L'enceinte est recouverte d'une chemise intérieure à double-paroi. Lorsque celle-ci est remplie d'azote, le vide atteint 2 à 3×10^{-11} mbar. Il descend à des valeurs typiques de l'ordre de 10^{-10} mbar durant dépôt. La chambre principale est équipée d'un équipement de diffraction RHEED in-situ. Il est accolé à une chambre annexe de stockage et d'analyse (caractérisation Auger). Plus récemment, des cellules d'évaporation ont été ajoutées sur une seconde chambre annexe. Un microscope STM équipe ce bâti d'ablation UHV.

Des couches ultra-minces de métaux de transition [14] [15] [16] [17] [18], de métaux de terres rares [19] [20] et de composés intermétalliques [21] [22] ont été préparées. Plus récemment, l'intérêt s'est porté sur la fabrication de nanostructures auto-assemblées, de type *Tb* [23] [24] ou fer pur [25] [26].

La préparation par PLD, dans divers laboratoires, de films à base de matériaux supraconducteurs à haute température critique [27] [28] [29] [30] [31] [32], puis de manganites

[33] [34], a stimulé dans un second temps la construction d'une chambre de dépôt laser pulsé pour le dépôt d'oxydes [35]. Celle-ci peut fonctionner soit sous vide secondaire poussé (2×10^{-7} mbar), soit sous atmosphère gazeuse. Elle a été utilisée pour la fabrication de manganites du type $(La,Ca)MnO_3$ et $(La,Sr)MnO_3$ [36], d'oxyde MnO [37], d'oxydes de Vanadium [38].

III NOTRE MONTAGE EXPÉRIMENTAL

Les éléments principaux du montage que nous avons développé sont présentés schématiquement sur la Fig. 1 et plus en détail sur la Fig. 2. Ils comprennent :

- ♦ la chambre de dépôt sous vide (partie gauche de la Fig. 2), incluant l'enceinte elle-même, le sas d'introduction, le porte-cible et le porte-substrat chauffant, ainsi que son système d'entraînement (partie droite de la Fig. 2).
- ♦ le laser Nd:YAG pulsé et le banc optique,
- ♦ la bobine supraconductrice, dont le cryostat est traversé d'un trou cylindrique horizontal à température ambiante dans lequel s'insère la chambre de dépôt, et d'un trou cylindrique vertical utilisé pour le passage du faisceau laser.

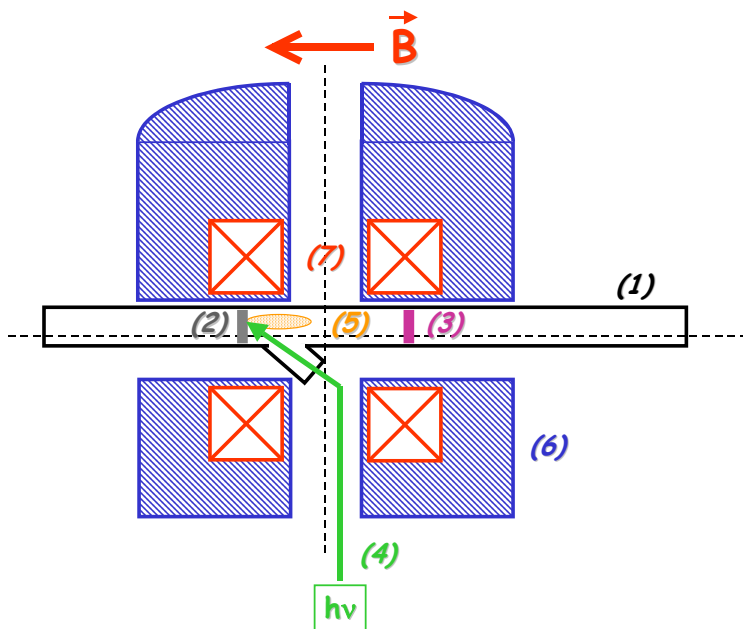


Fig. 1 : Vue schématique du dispositif expérimental. (1) Chambre de dépôt, (2) cible, (3) substrat, (4) radiation laser, (5) plume de matière évaporée, (6) cryostat, (7) enroulement supraconducteur (le champ magnétique est parallèle à la direction d'expansion de la plume). Le cryostat est sur un support (table) à 1.50 m du sol.

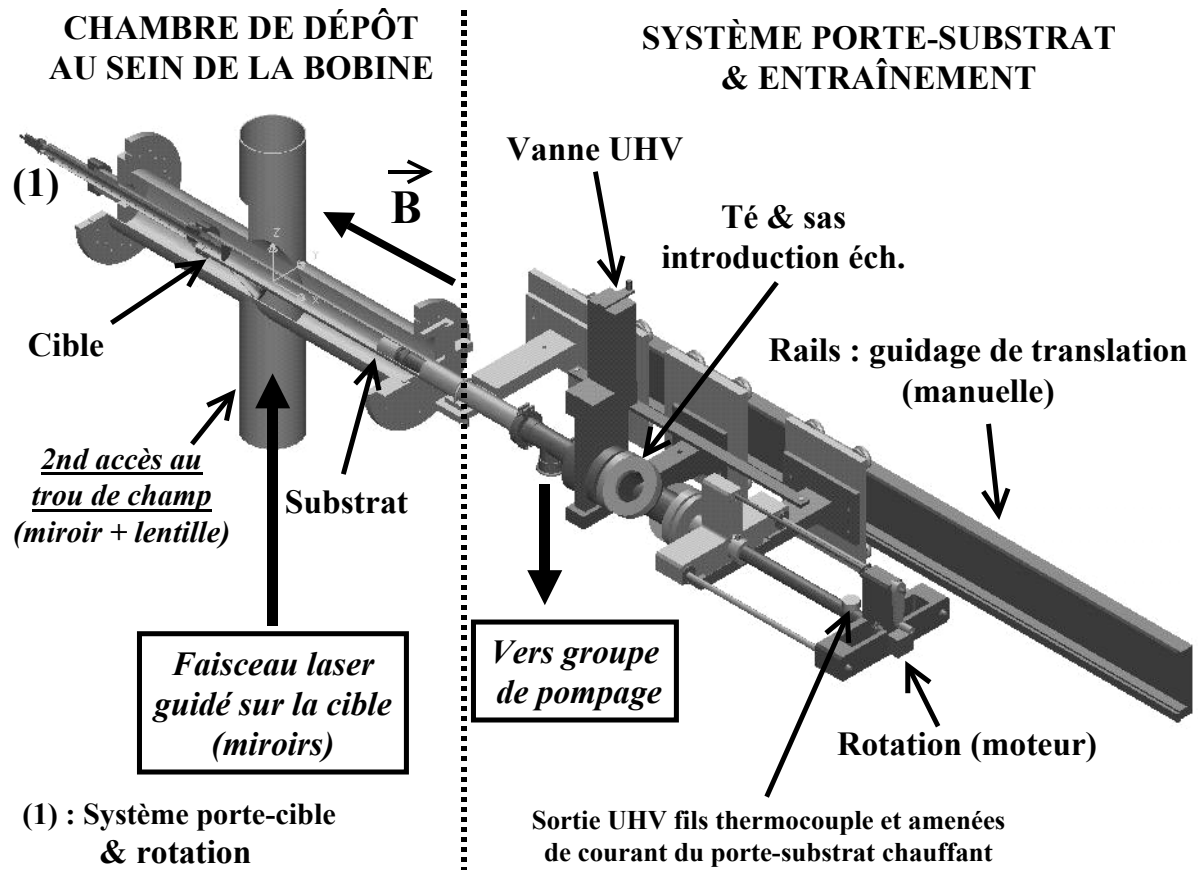


Fig. 2 : Vue générale du dispositif de dépôt laser pulsé sous champ magnétique. L'ensemble fait 2.50 m de long. Le cryostat (760 mm de diamètre et 870 mm de haut) n'est pas représenté. Les deux cylindres dont les axes sont à 90° , représentent le trou de champ et le second accès à ce dernier (tous deux de $\phi = 120$ mm). Le « système porte-substrat & entraînement » est soutenu par un châssis en inox amagnétique (de hauteur 1850 mm et de longueur 1600 mm) dont on ne voit que les rails de translation.

III.1 Enceinte de dépôt et sas

Le dessin de l'enceinte (Fig. 3) a été largement déterminé par les contraintes géométriques résultant des nécessités, d'une part d'introduction dans un trou de champ de diamètre restreint ($\phi = 120$ mm), d'autre part de maintenir l'accessibilité du faisceau laser sur la cible. L'enceinte est un cylindre en inox amagnétique de diamètre 40 mm et de longueur ≈ 1.20 m. Elle se termine par deux brides. L'une est destinée à recevoir le porte-cible, l'autre à recevoir le sas en forme de té, sur lequel s'attachent la tige porte-substrat, la tige d'introduction des échantillons et un hublot.

Un cylindre secondaire de diamètre $\phi = 25 \text{ mm}$ est soudé sur un trou oblongue placé au tiers de l'extrémité côté porte-cible. Son axe est incliné de 25° par rapport à l'axe du cylindre principal. Un hublot en quartz de diamètre 25 mm est fixé sur la bride soudée du côté de l'extrémité libre du cylindre secondaire. Ce hublot permet au faisceau de pénétrer dans la chambre.

Le sas a la forme d'un simple té. Le diamètre extérieur des quatre sorties est de 63 mm .

Les règles de construction de la chambre (préparation des assemblages à souder, conception des brides et choix des matériaux en particulier) correspondent à celles requises pour le haut vide secondaire. Le vide dans l'enceinte de dépôt est effectué par une pompe turbo-moléculaire mise en série avec une pompe à palettes. La pression de base atteinte se situe entre 10^{-6} et 10^{-7} mbar , qui correspond au vide limite du groupe de pompage. Nous avons effectué tous nos dépôts dans ces conditions expérimentales.

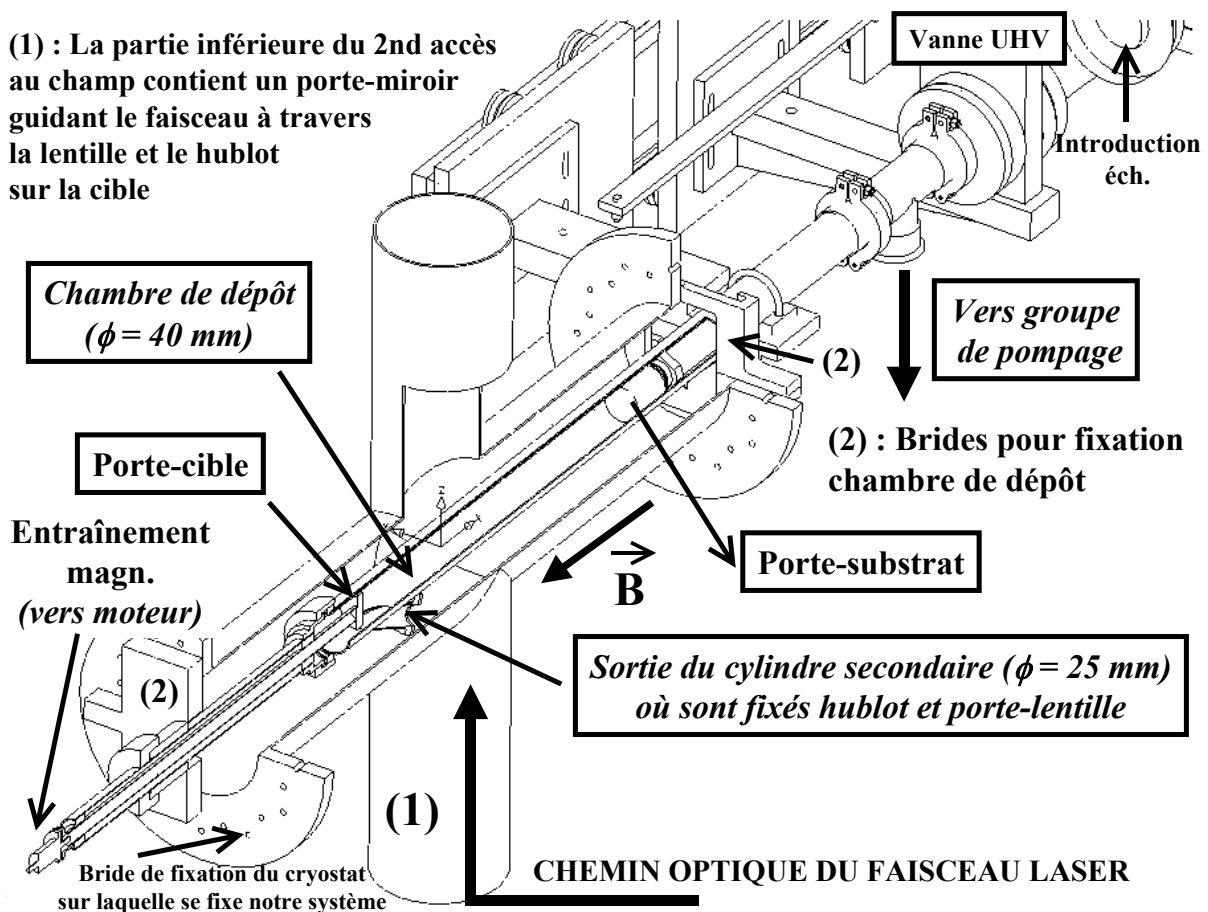


Fig. 3 : Vue en coupe de l'enceinte de dépôt. La chambre d'ablation ($\phi = 40 \text{ mm}$) est insérée dans le trou de champ de 120 mm de diamètre.

III.2 Porte-cible

(1) Le premier type de porte-cible nous a servi lors de l'étude de l'effet du champ magnétique sur un plasma de métaux purs. C'est une simple pièce d'aluminium, usinée dans la masse, constituée d'une plaque cylindrique de diamètre 39 mm et d'épaisseur 4 mm , et d'un embout cylindrique de diamètre 10 mm et longueur 15 mm . La cible métallique ($\phi \approx 35\text{ mm}$) est insérée sur la plaque du porte-cible et vissée par l'arrière au travers du cylindre, ou collée à l'aide d'une colle polymère sur cette même plaque. Pour réduire les risques de décollement, les surfaces en contact sont dépolies avec un simple scalpel avant collage. La tranche de la cible est reliée à la partie métallique du porte-cible avec de la laque argent pour garantir la mise à la masse de la cible. L'embout du porte-cible est introduit dans la tige creusée d'un passage tournant mécanique. Le passage tournant est fixé sur la bride d'entrée, de telle façon que son axe soit parallèle à l'axe de l'enceinte.

La tige, le porte-cible et la cible sont entraînés en rotation par un moteur à courant continu qui tourne à une vitesse typique de quelques dizaines de tours par minute. Grâce à cet arrangement, le rayonnement laser creuse dans la cible un sillon dont la largeur correspond au diamètre du faisceau focalisé (quelques mm dans notre cas) (Fig. 4). L'usure de la cible n'est pas aussi régulière que celle obtenue lorsque le faisceau balaye l'ensemble de la cible à l'aide d'un miroir vibrant [21], mais les limitations géométriques résultant du peu d'espace disponible nous ont imposé cette solution.

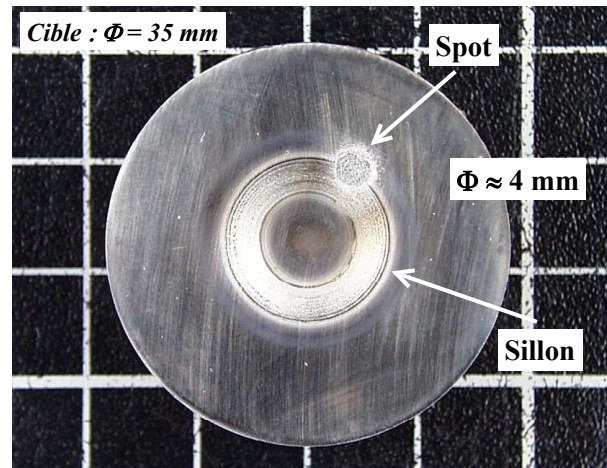


Fig. 4 : Cible de Mo de 35 mm de diamètre. Quand elle est en rotation, la radiation laser creuse un sillon dans le solide. Sans rotation, on remarque un spot légèrement elliptique de $\phi \approx 4\text{ mm}$. Le diamètre du spot et la largeur du sillon sont identiques.

(2) Un second type de porte-cible a été développé, adapté au dépôt de multicouches. Les dimensions essentielles sont identiques à celles du premier porte-cible. La plaque porte-cible a une épaisseur de 5 mm , elle est filetée sur la tranche, la surface destinée à recevoir la cible est entièrement plate (Fig. 5). Un écrou fileté et percé en son centre sur un diamètre de 35 mm se

visse sur la plaque porte-cible et permet de maintenir les deux cibles des matériaux à évaporer selon le montage schématisé sur la Fig. 5.

La forme en équerre de l'une des deux cibles assure leur séparation. Ainsi, la contamination possible des cibles par d'éventuelles espèces redéposées est évitée. La rotation de la cible est réalisée grâce à un entraînement magnétique compatible ultra-vide, développé par la société APRIM-Vide. Celui-ci est constitué d'aimants permanents. La mise en rotation, à une vitesse typique de l'ordre de 1 tour par seconde, est réalisée par un moteur pas-à-pas, commandé en synchronisation avec le faisceau laser (voir Paragraphe III.7 p. 24).

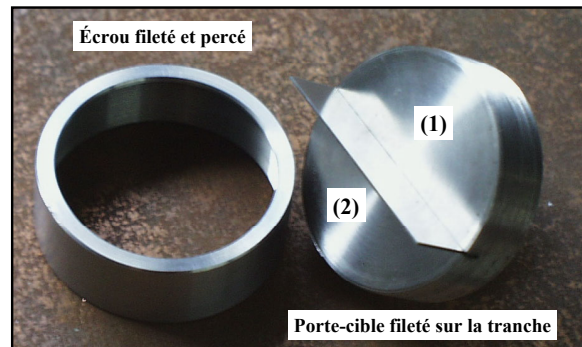


Fig. 5 : Porte-cible adapté au dépôt de multicouches. Cible circulaire (1) dont la demi-surface est recouverte par une cible en équerre (2). Le faisceau laser arrive par le bas sur la demi-cible inférieure.

Précisons qu'en pratique, lors des expériences présentées dans ce manuscrit, un porte-cible de type (1) a été utilisé pour *Al*, *Cu* et *Mo* et un porte-cible de type (2) a été utilisé pour *Fe* et *Pt*.

III.3 Porte-substrat

Deux types de porte-substrat ont été développés.



Fig. 6 : Porte-substrat formé de deux parties cylindriques. (a) Plaque (1) permettant de fixer les substrats tel que leur surface soit parallèle à celle de la cible. (b) La distance cible-substrat est déterminé par le cylindre n°2. Une encoche permet le passage du faisceau laser.

(1) Le premier type de porte-substrat a permis l'étude de l'effet du champ sur les espèces évaporées (Fig. 6). Il est formé de deux éléments cylindriques creux. Le premier (1) est un simple cylindre d'aluminium de 39 mm de diamètre extérieur et de 58 mm de longueur. Il est percé au diamètre de 35 mm sur l'essentiel de sa longueur. Un logement taraudé de 39 mm de diamètre et 3 mm de longueur ménagé à une extrémité est destiné à recevoir les substrats. Des gorges en forme de V ont été usinées le long des génératrices pour améliorer la mise en vide de l'enceinte. Le second cylindre fileté (2) vient se visser

dans le logement. Il permet la fixation du substrat. L'extrémité non filetée vient s'appuyer sur la cible, déterminant ainsi la distance cible-substrat. Un jeu de trois cylindres, de longueurs respectives 7, 15 et 30 cm, a été fabriqué pour permettre des

dépôts à différentes distances cible-substrat. Ces cylindres permettent ainsi une variation facile de la distance cible-substrat de 7 cm (correspondant au minimum disponible lié au passage du laser) à 30 cm limite de la zone d'homogénéité du champ magnétique -voir Paragraphe III.6 p. 22-).

Cet ensemble porte-substrat est statique durant le dépôt. L'introduction dans la chambre se fait manuellement, à pression atmosphérique, à l'aide d'une canne munie d'un système de baïonnette.

(2) Le second porte-substrat est chauffant (Fig. 7). Il a été développé pour le dépôt d'échantillons à haute température ou la réalisation de traitement thermique in-situ. Ce porte-substrat a été développé en collaboration avec Méca 2000, en vue de répondre aux contraintes expérimentales suivantes : compatibilité vide poussé, espace limité, fonctionnement sous champ magnétique intense. L'échantillon se fixe sur un porte-échantillon en molybdène (un

système Molybloc standard) de 28 mm de diamètre et 44 mm de longueur, à l'aide d'un masque en tantale vissé. Le Molybloc est emboîté au-dessus de la partie chauffante qui est constituée d'un filament de tantale de diamètre 0.342 mm enroulé et fixé sur un support en alumine. Ce support, comme ceux se situant à l'arrière du dispositif, sert également d'écran thermique. Le filament chauffant est alimenté par une alimentation stabilisée à courant continu Sorensen (80 V-13 A), pilotée en courant par un régulateur de température PID Eurotherm. La chaleur se propage par conduction thermique depuis le Molybloc jusqu'à l'échantillon. Un thermocouple de type K affleure la partie interne du porte-échantillon en molybdène. Il permet de lire la température de l'échantillon en cours de traitement. Les pertes thermiques dues à un quelconque gradient sont négligeables dans cette géométrie. La température maximale est de $\approx 800\text{ }^{\circ}\text{C}$ (8 V-10 A).

Les fils d'alimentation électrique du four sont en cuivre électrolytique, isolés avec de la fibre de verre. Les fils thermocouple sont isolés avec des perles d'alumine. Ces fils passent au centre du système de translation-rotation du porte-substrat. Les passages thermocouple et électrique sont compatibles UHV (brides CF).

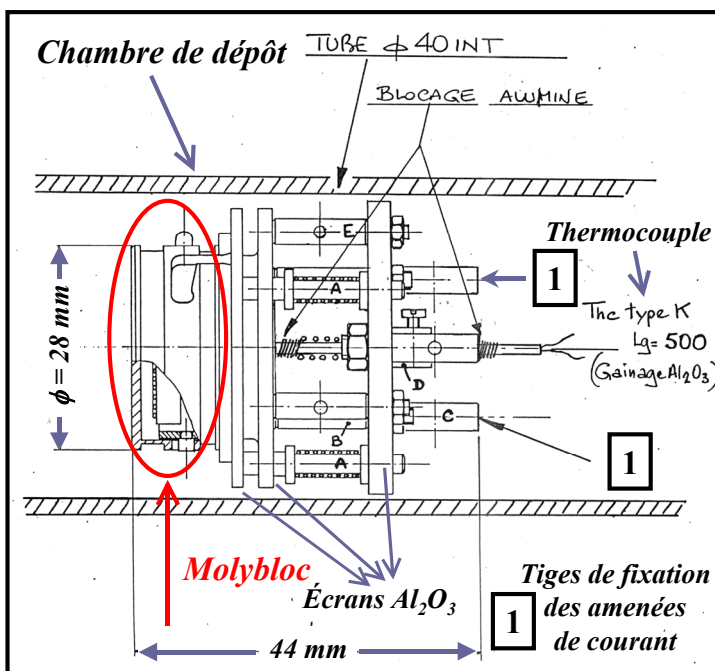


Fig. 7 : Porte-substrat chauffant, situé au bout de la canne de translation-rotation. Les amenées de courant et les fils thermocouples (de 2 à 3 m de long) sortent de l'enceinte d'ablation au niveau de la pièce de fixation du moteur (voir Fig. 2 p. 13). Ils sont fixés à l'arrière du four, sur les tiges conductrices, à l'aide de cavaliers en tantale.

III.4 Translation-rotation du porte-substrat

L'ensemble porte-substrat se fixe sur une longue tige permettant la translation du porte-substrat le long de l'axe cible-substrat et sa rotation dans le plan perpendiculaire à cet axe

(Fig. 2 p. 13 et Fig. 3 p. 14). La tige est introduite dans la chambre à travers un passage de type presse-étoupe. La translation de la tige est manuelle, elle peut se faire sur une longueur de 30 cm . La mise en rotation est assurée par un moteur pas-à-pas. Le moteur fournit un couple de 2.72 Nm , une telle valeur est nécessaire pour la mise en rotation de ce lourd équipement de plusieurs kg et de $\approx 1.50\text{ m}$ de long. Ce moteur est commandé en synchronisation avec la cible et le laser (Paragraphe III.7 p. 24). Ainsi, le substrat est animé d'un mouvement oscillant d'une amplitude constante pendant la durée du dépôt et pouvant aller jusqu'à 360° suivant les besoins de l'expérience.

Dans le but d'améliorer la pression de base à l'intérieur de la chambre, le porte-substrat peut être introduit dans la chambre par l'intermédiaire d'un sas. Celui-ci est constitué d'une vanne ultra-vide VAT, d'un té et d'un hublot (Fig. 2 p. 13 et Fig. 3 p. 14). On peut ainsi changer de substrat sans casser le vide à l'intérieur de l'enceinte de dépôt.

Tout cet ensemble expérimental est maintenu et soutenu grâce à un châssis en inox amagnétique.

III.5 Laser et optique

III.5.1 Le laser

Nous avons fait l'acquisition d'un laser Nd:YAG pulsé (Q-Switched Nd:YAG Lasers, SAGA Series, Thomson-CSF Laser -maintenant Thalès Laser SA-).

Le milieu actif pour l'émission stimulée est un cristal de $Y_3Al_5O_{12}$ dopé au néodyme ($Nd^{3+}:YAG$) de la famille des grenats d'yttrium et d'aluminium. La transition utile se situe entre les niveaux métastables $^4F_{3/2}$ et $^4I_{11/2}$ de Nd^{3+} , à la longueur d'onde fondamentale de 1064 nm (infra-rouge). En utilisant les propriétés de non-linéarité de certains cristaux sous forte intensité d'irradiation, il est possible de doubler et tripler la longueur d'onde fondamentale. Notre laser possède deux générateurs d'harmoniques. Nous disposons donc de deux radiations supplémentaires à 532 nm (visible-vert) et 355 nm (ultra-violet).

La cadence de tir est de 10 Hz . Le laser peut fonctionner par déclenchement externe ou interne. La durée des impulsions est $\tau = 5 \text{ à } 7\text{ ns}$. Le diamètre du faisceau est $\phi = 9.5\text{ mm}$. La divergence du faisceau est de 0.5 mrad . Sa stabilité en énergie est de 1.2% . La stabilité spatiale du faisceau vaut $\pm 70\text{ }\mu\text{rad}$.

Conditions d'utilisation du laser lors nos expériences :

De façon générale, le taux d'ablation des métaux tend à augmenter lorsque la longueur d'onde du laser diminue [39] [21]. Cependant, plus la longueur d'onde diminue, plus l'énergie par impulsion disponible devient faible et donc la densité d'énergie sur la cible peut être insuffisante. Nos dépôts ont tous été effectués à la longueur d'onde $\lambda = 532 \text{ nm}$. À cette valeur, le taux d'ablation reste important. Un autre avantage très significatif est que cette longueur d'onde se situe dans le visible. L'énergie par impulsion de notre laser est de 600 mJ à $\lambda = 532 \text{ nm}$ (elle est de 1200 mJ à la longueur d'onde fondamentale et 350 mJ à $\lambda = 355 \text{ nm}$). La densité de puissance correspondante, pour un diamètre typique du faisceau de 9 mm , est estimée à $2 \times 10^8 \text{ W cm}^{-2}$, pour une fréquence de répétition de 10 Hz . La stabilité énergétique du laser s'est révélée de l'ordre de 1% sur des périodes de l'ordre de quelques heures, en accord avec les spécifications techniques. À l'échelle de nos expériences, une telle stabilité est entièrement satisfaisante.

Au début de cette étude, Thomson nous a prêté un laser Nd:YAG pulsé de la série à laquelle appartient le laser que nous avons finalement acquis, mais de puissance supérieure. L'énergie par impulsion valait 2300 mJ à $\lambda = 1064 \text{ nm}$ et 1250 mJ à $\lambda = 532 \text{ nm}$, la largeur d'une impulsion était de 6 à 8 ns , le diamètre du faisceau de 13 mm et la cadence de tir de 10 Hz .

III.5.2 Les optiques

Le chemin optique du faisceau est schématisé sur la Fig. 1 (p. 12). Toutes les optiques sont situées à l'extérieur de la chambre de dépôt. À la sortie du laser, le faisceau est tout d'abord dévié sous le cryostat par trois miroirs à 45° . Un quatrième miroir situé à l'intérieur du trou d'accès de la bobine amène le faisceau sur la cible. Il est monté sur un porte-miroir de notre conception (Fig. 8 (b) et (c)). Celui-ci inclut un système à rotule permettant le réglage tridimensionnel du faisceau. Il est gouverné par une tige située sous le cryostat (Fig. 8 (d)). La position du faisceau sur la cible est variable. Les miroirs utilisés ont subi un traitement de surface spécifique pour la longueur d'onde $\lambda = 532 \text{ nm}$. Avant de traverser le hublot d'entrée de l'enceinte de dépôt, le faisceau est focalisé sur la cible par une lentille plan-convexe convergente de focale variable (10 à 50 cm). La lentille, de diamètre $\phi = 23 \text{ mm}$, est montée sur un porte-lentille en laiton (également de notre conception) présenté sur la Fig. 8 (a) et (c). Ce porte-lentille permet l'ajustement en translation de la lentille. Et à travers lui l'ajustement

de la dimension du spot sur la cible. Il est constitué d'un cercle en laiton recevant la lentille et pouvant coulisser autour d'un tube cylindrique taraudé creux sur une distance d'environ 50 mm . Cette translation s'effectue par l'intermédiaire d'une courroie et d'une poulie situées sous le cryostat (Fig. 8 (d)).

L'ensemble lentille / porte-lentille est fixé au hublot d'entrée de la chambre par trois vis (Fig. 8 (a)). Son axe est incliné de 25° par rapport à la normale à la cible. Cet angle a été imposé par la géométrie du bâti d'ablation. Notons que dans la littérature, un angle d'incidence proche de 45° est souvent choisi [40]. Le traitement de surface des lentilles est spécifique pour $\lambda = 532\text{ nm}$. Le hublot d'entrée est en verre classique, il est source de pertes optiques par absorption et réflexion, de l'ordre de 25% (voir Paragraphe III.5.3 p. 22).

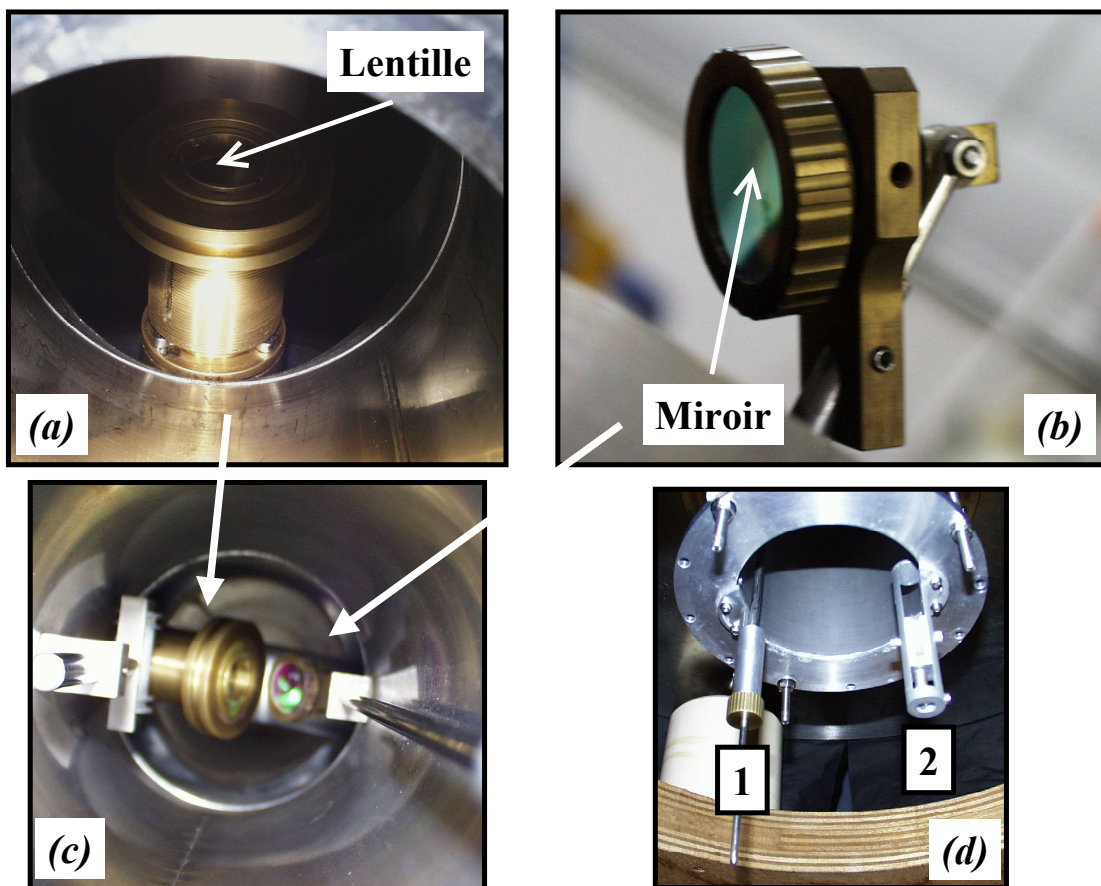


Fig. 8 : (a) Porte-lentille au sein du trou d'accès vertical au champ magnétique (vue de dessous), (b) porte-miroir, (c) porte-lentille et porte-miroir positionnés au sein du trou d'accès vertical, (d) tige (1), située sous le cryostat, permettant le mouvement 3-D du miroir ; dispositif à courroie et poulie (2) permettant la translation de la lentille.

III.5.3 Remarque sur la densité d'énergie incidente sur la cible

En raison des pertes successives sur les miroirs, lentille et hublot, l'énergie du faisceau sur la cible diffère notablement de l'énergie en sortie de laser. Ne pouvant mesurer directement la valeur de l'énergie incidente effective sur la cible, nous l'avons évaluée. Cette évaluation requiert la mesure de l'énergie du faisceau et des pertes liées à la traversée de chaque élément optique (miroirs, lentille et hublot). Nous avons déduit de ces données une perte d'énergie totale de l'ordre de 40 % principalement imputable au hublot d'entrée dans la chambre, non traité anti-reflet pour la longueur d'onde $\lambda = 532 \text{ nm}$. Une difficulté supplémentaire est la variation inévitable de la densité d'énergie, résultant d'une dégradation progressive des miroirs et lentille, et de dépôts recouvrant progressivement le hublot. Dans le cas présent, aucune dégradation significative des miroirs et lentille n'a été observée. L'essentiel des pertes énergétiques du faisceau doivent être attribué au dépôt qui se fait sur le hublot d'entrée. Nous avons cependant noté que l'on atteint assez rapidement un régime stationnaire, la matière qui se dépose sur le hublot étant elle-même re-évaporée par la radiation laser.

Les densités d'énergie que nous évoquerons dans l'ensemble de ce manuscrit seront les densités d'énergie évaluées sur la cible. Toutes pertes liées au chemin optique du faisceau auront été soustraites.

III.6 Aimant supraconducteur

La source de champ magnétique que nous avons utilisée est un aimant supraconducteur en *Nb-Ti*, à bobines séparées de type Helmholtz, construit par Oxford Instruments. L'enroulement supraconducteur est placé dans un cryostat thermalisé à 4.2 K, protégé par une garde d'azote liquide. L'entrefer est à température ambiante. C'est un espace cylindrique horizontal de 120 mm de diamètre et 760 mm de longueur (Fig. 1 p. 12). Le champ magnétique est horizontal, parallèle à l'axe de l'entrefer. Sa valeur maximale est de 5 T à 4.2 K. C'est la configuration, de type Helmholtz, des bobines qui permet d'offrir un second accès au trou de champ, d'axe vertical, lui aussi à 300 K.

La carte de champ magnétique de la bobine a été calculée à partir des paramètres dimensionnels de l'aimant supraconducteur que Oxford Instruments a accepté de nous fournir. Elle est présentée sur la Fig. 9 (a). Sur cette figure, la couleur la plus claire correspond à

l'emplacement des bobines (centres des bobines où l'induction est la plus forte numéroté (1)), les axes z et r sont respectivement les axes de symétrie du trou de champ et du 2nd accès vertical. Le centre du repère est au centre de l'ensemble formé par les deux bobines de Helmholtz (représenté par une croix sur la Fig. 9). Les profils de champ $B(z)$ en fonction de la position radiale r (Fig. 9 (b)) ont été calculés pour un courant maximal de $112.80 A$, correspondant au champ magnétique maximum pouvant être délivré par l'aimant ($5 T$). L'induction magnétique présente une zone homogène à $\pm 5 \%$ selon z sur $\pm 150 mm$ environ et selon r sur $\pm 60 mm$ environ. Au-delà, l'induction décroît rapidement et les lignes de champ divergent.

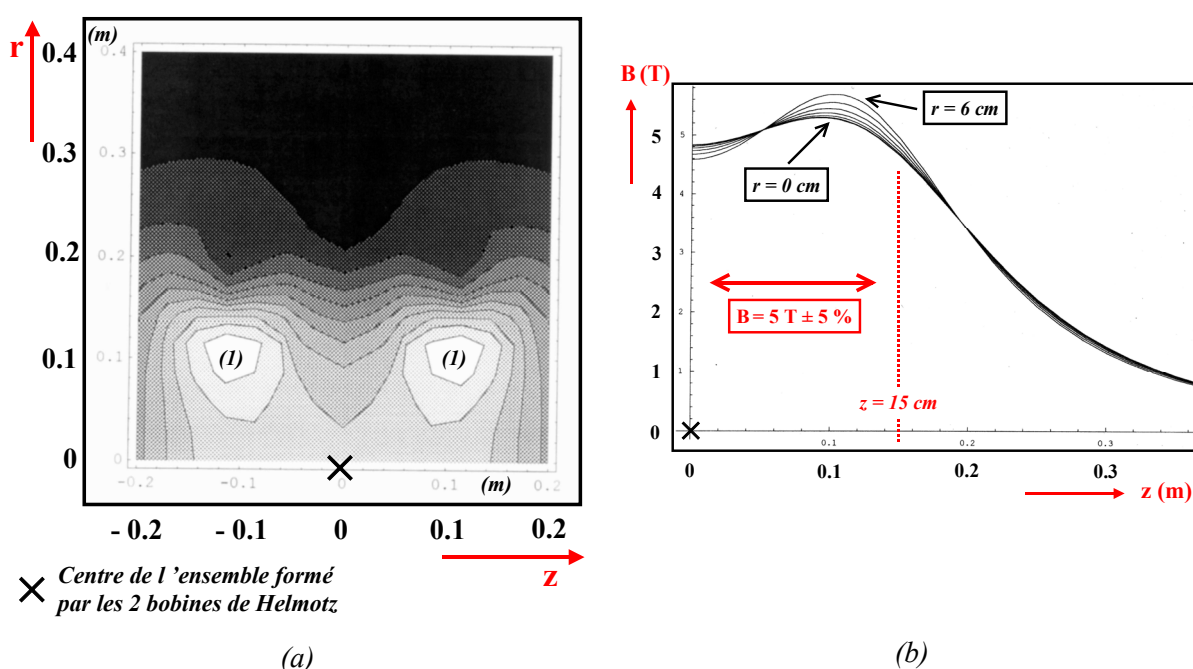


Fig. 9 : (a) Carte de champ magnétique. (1) représente le centre des bobines où l'induction est maximale (couleur blanche). La partie inférieure de l'aimant, non représentée, est symétrique selon z . (b) Profil de l'induction magnétique en fonction de z et r .

Lors de ce travail, nous avons en particulier analysé l'expansion de la plume de matière évaporée sous champ magnétique (voir Chapitre 4). Le schéma d'implantation de la chambre de dépôt au sein de la bobine est indiqué sur la Fig. 10. Pour des raisons d'encombrement géométrique, l'axe de la chambre n'est pas confondu avec l'axe du champ magnétique. Afin que les positions de la cible et du substrat se situent dans la limite des $\pm 5 \%$ d'homogénéité du champ magnétique selon z et r (condition automatiquement satisfaite selon r , dans la

mesure où la chambre de dépôt fait 40 mm de diamètre), nous avons déterminé la distance cible-substrat maximale accessible selon z telle que $d_{\text{cible-substrat}} = 30\text{ cm}$.

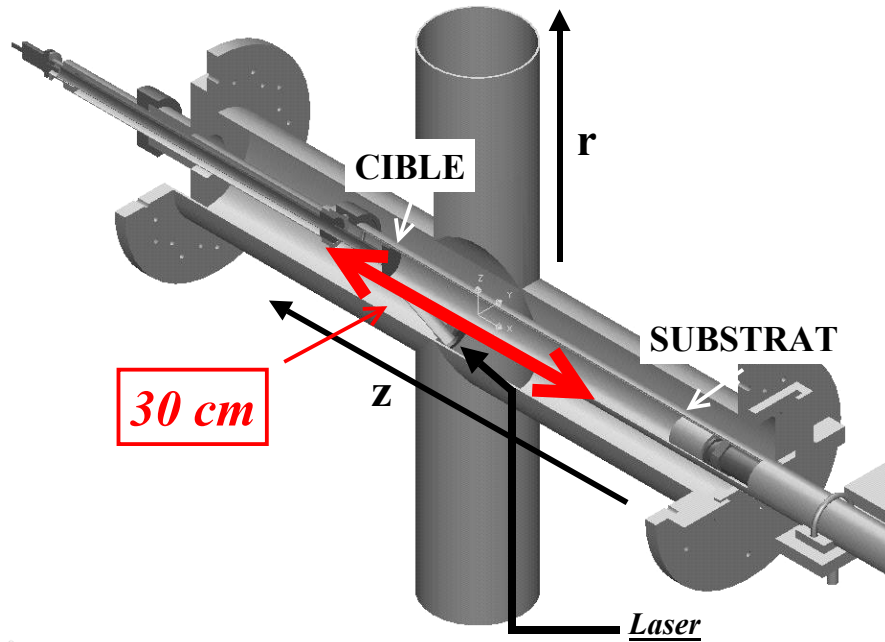


Fig. 10 : Schéma d'implantation de la chambre de dépôt au sein de l'aimant supraconducteur. La distance cible-substrat maximale autorisée, dans la limite de $\pm 5\%$ d'homogénéité de B , est de 30 cm .

III.7 Pilotage du dispositif expérimental

Le pilotage du dispositif expérimental a été réalisé en collaboration avec Jean-Claude Cotillard.

III.7.1 Synoptique du pilotage

L'alimentation de la bobine supraconductrice est manuelle.

Le laser n'est pas totalement automatisé. La mise sous tension de l'appareil ainsi que le déclenchement des tirs sont assurés par l'utilisateur. Un beam-stop extérieur au laser est piloté, par l'intermédiaire d'un boîtier électronique, par un signal binaire (ouvert / fermé). Ainsi l'arrivée du faisceau sur la multi-cible est-elle synchronisée avec le début du dépôt. La commande du beam-stop est pilotée à travers un port parallèle.

Les deux moteurs pas-à-pas d'entraînement du porte-cible et du porte-substrat sont commandés par un coffret électronique, lui-même piloté à travers un port série RS 232C du micro-ordinateur (PC) d'automatisation.

Le four, bien que contrôlé par un régulateur de température, n'est pas piloté par le programme.

III.7.2 Menu général de pilotage et description du programme

Le programme de pilotage, écrit sous LabVIEW 5.1, permet de contrôler et déterminer les séquences de dépôt ainsi que les rotations de la cible et du substrat.

Les trois séquences principales sont :

- ◆ rotation séquentielle du moteur du porte-cible autour de la cible élémentaire choisie,
- ◆ rotation du porte-substrat pendant cette période (homogénéisation du dépôt),
- ◆ ouverture et fermeture du beam-stop en début et fin de dépôt et lors de chaque changement de cible.

La succession des opérations peut être décrite de la façon suivante :

- ◆ fermeture du beam-stop,
- ◆ rotation d'un demi tour pour changer de cible,
- ◆ oscillation de la cible autour d'une position centrale,
- ◆ mise en rotation du porte-substrat,
- ◆ ouverture du beam-stop.

Notons que les détections de zéro des moteurs pas-à-pas de la cible et du substrat sont manuelles. En fait, une fois cible et substrat installés dans l'enceinte d'ablation, il suffit de repérer leur position par rapport à l'extérieur de la chambre. Ainsi chaque nouveau dépôt peut-il être effectué dans les mêmes conditions de positionnement.

L'ensemble des paramètres accessibles à l'utilisateur apparaissent sur la face avant de pilotage (Fig. 11). Ce sont les suivants :

- ♦ l'angle d'oscillation de la cible
($400 \text{ pas} = 360^\circ$),
- ♦ la vitesse des moteurs
(quelques *tours / min*),
- ♦ la rotation initiale du substrat (réglage de sa position),
- ♦ les paramètres « oscillation substrat positif » et « oscillation substrat négatif » qui permettent de choisir le mode de rotation du substrat (mouvements allers-retours sur 360° , oscillations selon un certain angle, etc...),
- ♦ la durée du dépôt en secondes, pour chacun des matériaux à faire croître.

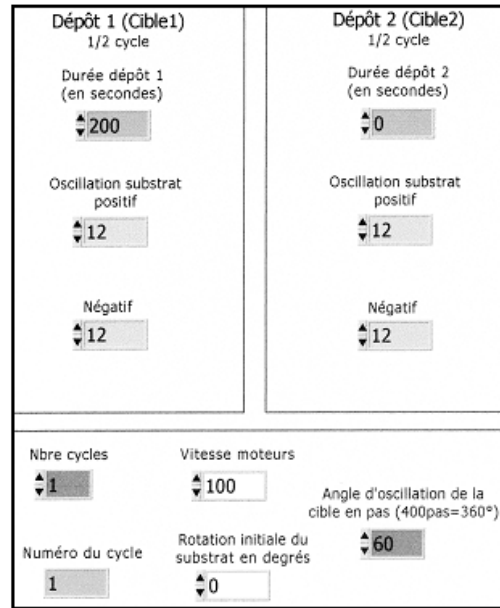


Fig. 11 : Paramètres de pilotage (face avant).

IV CIBLE, SUBSTRAT, ET LEURS PRÉPARATIONS

IV.1 La cible

Les cibles de métaux purs que nous avons utilisées étaient de simples plaques (de pureté supérieure ou égale à 99.95 %) directement acquises auprès des fournisseurs et coupées aux dimensions requises. Dans le cas du dépôt d'alliages, les cibles ont été obtenues par fusion inductive en creuset froid. Dans tous les cas, les cibles ont été nettoyées, polies et fixées sur le porte-cible selon le schéma déjà indiqué. La mise en place des cibles nécessite de retirer l'enceinte de l'aimant supraconducteur.

IV.2 Le substrat

Nous avons utilisé deux types de substrats : du verre classiquement utilisé en microscopie optique de 0.1 à 1 mm d'épaisseur et de surface $4 \times 4 \text{ mm}$ environ, et du MgO (001) de 500 μm d'épaisseur et de 5 mm de côté. Le verre a été nettoyé à l'éthanol pur puis dégazé in-situ à 650°C sous vide secondaire. Une procédure standard a été utilisée pour nettoyer MgO . Les substrats de MgO sont fournis polis par Crystal GmbH. Ils sont dégraissés (RBS), passés à l'acide (H_2SO_4 (35 %) + H_2O_2 (15 %) + H_2O (50 %)) pour éliminer tout résidu métallique, puis dégazés in-situ à 650°C sous vide secondaire.

Lors des dépôts sous champ magnétique, le dépôt est extrêmement localisé de dimensions largement inférieures au diamètre de la chambre et donc du substrat (nous montrerons que ceci est lié à la focalisation et à la concentration du dépôt résultants de l'application d'un champ magnétique). Afin d'ajuster la position du substrat (ou de la sonde de Langmuir²) en regard du spot d'ablation de la cible, un dépôt de quelques minutes est effectué sur un film plastique de diamètre $\phi = 35 \text{ mm}$. La région de dépôt maximal étant ainsi déterminée de façon visuelle, le substrat peut être placé de façon précise à l'endroit désiré.

V RÉFÉRENCES

- 1 **C. de Julián Fernández, J.L. Vassent et D. Givord**, *Thin film deposition by magnetic field-assisted pulsed laser assembly*. Appl. Surf. Sci., 138-139 (1999) p. 150-154.
- 2 **H.M. Smith et A.F. Turner**, Applied Optics, 4 (1965) p. 147.
- 3 **D.B. Chrisey et A. Inam**, *Pulsed Laser Deposition of high T_c superconducting thin films for electronic device applications*. MRS Bulletin, 17(2) (1992) p. 37-43.
- 4 **C.M. Cotell et K.S. Grabowski**, *Novel materials applications of Pulsed Laser Deposition*. MRS Bulletin, 17(2) (1992) p. 44-53.
- 5 **H. Jenniches, M. Klaua, H. Höche et J. Kirschner**, *Comparison of pulsed laser deposition and thermal deposition : improved layer-by-layer growth of Fe/Cu(111)*. Appl. Phys. Lett., 69(22) (1996) p. 3339.
- 6 **E. van de Riet, J.C.S. Kools et J. Dieleman**, *Incongruent transfer in laser deposition of FeSiGaRu thin films*. J. Appl. Phys., 73(12) (1993) p. 8290-8296.
- 7 **J.G. Lunney**, *Pulsed laser deposition of metal and metal multilayer films*. Appl. Surf. Sci., 86 (1995) p. 79-85.
- 8 **S. Fähler, K. Sturm et H.U. Krebs**, *Resputtering during the growth of pulsed-laser-deposited metallic films in vacuum and in ambient gas*. Appl. Phys. Lett., 75(24) (1999) p. 3766-3768.
- 9 **S. Sundar-Manoharan, J. Shen, H. Jenniches, M. Klaua et J. Kirschner**, *On the fabrication of stacked monolayers of Fe/Cu(100) by pulsed laser deposition*. J. Appl. Phys., 81(8) (1997) p. 3768-3770.
- 10 **C. Belouet**, *Thin films growth by pulsed laser assisted deposition technique*. Appl. Surf. Sci., 96-98 (1996) p. 630-642.
- 11 **I.I. Aksenov, V.A. Belous, V.G. Padalka et V.M. Khoroshikh**, *Transport of plasma streams in a curvilinear plasma-optics system*. Soviet J. Plasma Phys., 4(4) (1978) p. 425-428.
- 12 **S. Anders, S. Raoux, K. Krishnan, R.A. Mac Gill et I.G. Brown**, *Plasma distribution of cathodic arc deposition systems*. J. Appl. Phys., 79(9) (1996) p. 6785-6790.
- 13 **R. Jordan, D. Cole et J.G. Lunney**, *Pulsed laser deposition of particulate-free thin films using a curved magnetic filter*. Appl. Surf. Sci., 109-110 (1997) p. 403-407.

² Voir Chapitre 3.

- 14 **O.F.K. Mc Grath**, *Structural and magnetic properties of epitaxial W/Fe/W and Gd/Fe films grown by pulsed laser deposition*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1994).
- 15 **S. Jaren, E. du Tremollet de Lacheisserie, D. Givord et C. Meyer**, *Pulsed laser deposition epitaxial growth and magnetic properties of TbCo₂ and TbFe₂ ultra-thin films*. J. Magn. Magn. Mater., 165(1-3) (1997) p. 172-175.
- 16 **S. Jaren**, *Étude de TbFe₂ épitaxié par dépôt laser pulsé : des couches minces aux nanostructures magnétiques*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1998).
- 17 **O. Fruchart**, *Élaboration, étude et modélisation d'un système magnétique modèle : réseaux de plots sub-microniques ultraminces de Fe(110) épitaxié à anisotropie planaire*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1998).
- 18 **O. Fruchart, J.P. Nozières et D. Givord**, *Growth and interface magnetic anisotropy of epitaxial Mo/Fe/Mo(110) and W/Fe/W(110) ultrathin films*. J. Magn. Magn. Mater., 207(1-3) (1999) p. 158-167.
- 19 **J. Rothman, C. Meyer, D. Givord, J. Vogel, M. Finazzi, A. Fontaine, J.P. Kappler et N.B. Brookes**, *Magnetic and electronic properties of epitaxial gamma - cerium thin films*. J. Magn. Magn. Mater., 198-199 (1999) p. 276-278.
- 20 **J. Rothman**, *Étude des propriétés structurales, électroniques et magnétiques de couches minces épitaxiées de cérium*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1999).
- 21 **F. Robaut**, *Élaboration par dépôt laser pulsé et caractérisation de couches minces épitaxiées de métaux de terres rares et de composés intermétalliques terre rare-cobalt*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1995).
- 22 **F. Robaut, P. Milkulik, N. Cherief, D. Givord, T. Baumbach et J.Y. Veullen**, *Epitaxial growth and characterization of Y₂Co₁₇(0001) thin films deposited on W(110)*. J. Appl. Phys., 78(2) (1995) p. 997-1003.
- 23 **S. Pokrant, O. Fruchart, C. Meyer et L. Ortega**, *Growth of Tb(0001) on Nb and Mo(110) surfaces*. Surface Sci., 506(3) (2002) p. 235-242.
- 24 **S. Pokrant, C. Meyer, O. Fruchart et A. Sulpice**, *Magnetic properties of Tb(0001) particles on Nb(110)*. J. Magn. Magn. Mater., 242(Part 1) (2002) p. 568-571.
- 25 **P.O. Jubert, O. Fruchart et C. Meyer**, *Self-assembled growth of faceted epitaxial Fe(110) islands on Mo(110)/Al₂O₃(11-20)*. Phys. Rev. B, 64(11) (2001) p. 115419/1-10.
- 26 **P.O. Jubert**, *Croissance et propriétés magnétiques de nanostructures épitaxiées auto-assemblées : le système Fe/Mo(110)*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (2001).
- 27 **A. Inam, X.D. Wu, T. Venkatesan, S.B. Ogale, C.C. Chang et D. Dijkkamp**, *Pulsed laser etching of high T_c superconducting films*. Appl. Phys. Lett., 51(14) (1987) p. 1112-1114.
- 28 **Q.Y. Ying, D.T. Shaw et H.S. Kwok**, *Spectroscopic study of plasma-assisted laser deposition of Y-Ba-Cu-O*. Appl. Phys. Lett., 53(18) (1988) p. 1762-1764.
- 29 **J.P. Zheng, Z.Q. Huang, D.T. Shaw et H.S. Kwok**, *Generation of high-energy atomic beams in laser-superconducting target interactions*. Appl. Phys. Lett., 54(3) (1989) p. 280-282.
- 30 **A. Gupta, B. Braren, K.G. Casey, B.W. Hussey et R. Kelly**, *Direct imaging of the fragments produced during excimer laser ablation of YBa₂Cu₃O_{7-δ}*. Appl. Phys. Lett., 59(11) (1991) p. 1302-1304.
- 31 **J.G. Lunney, J.F. Lawler et R. Aratari**, *Ion emission studies of pulsed laser evaporation of YBa₂Cu₃O₇*. J. Appl. Phys., 74(6) (1993) p. 4277-4279.

- 32 **G.C. Tyrrell, T.H. York et I.W. Boyd**, *Characterisation of ionic species generated during ablation of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$* . Appl. Surf. Sci., 86 (1995) p. 50-58.
- 33 **J.F. Lawler, J.G. Lunney et J.M.D. Coey**, *Tunnelling like behaviour in trilayer heterostructures of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ / $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ / $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$* Physica C, 235-240(part 2) (1994) p. 737-738.
- 34 **J.Y. Gu, K.H. Kim, T.W. Noh et K.S. Suh**, *Epitaxial growth and magnetoresistance of $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_{3-\delta}$ on $\text{MgO}(001)$ substrates*. J. Appl. Phys., 78(10) (1995) p. 6151-6156.
- 35 **L. Ranno, A. Llobet, M.B. Hunt et J. Pierre**, *Influence of substrate temperature on magnetotransport properties of thin films of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$* . Appl. Surf. Sci., 138-139 (1999) p. 228-232.
- 36 **L. Ranno, A. Llobet, R. Tiron et E. Favre-Nicolin**, *Strain-induced magnetic anisotropy in epitaxial manganite films*. Appl. Surf. Sci., 188(1-2) (2002) p. 170-175.
- 37 **W. Neubeck, L. Ranno, M.B. Hunt, C. Vettier et D. Givord**, *Epitaxial MnO thin films grown by pulsed laser deposition*. Appl. Surf. Sci., 138-139 (1999) p. 195-198.
- 38 **A. Sollier**, *en cours*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (2003).
- 39 **K.L. Saenger**, *Angular distribution of ablated material*, dans *Pulsed laser deposition of thin films*, D.B. Chrisey et G.K. Hubler, Editors (1994) John Wiley and Sons, New York, p. 199-227.
- 40 **L. Torrisi, G. Ciavola, S. Gammino, L. Andò, A. Barnà, L. Láska et J. Krása**, *Metallic etching by high power Nd:yttrium-aluminum-garnet pulsed laser irradiation*. Rev. Sci. Instrum., 71(11) (2000) p. 4330-4334.

CHAPITRE 2 :

PLASMAS GÉNÉRÉS PAR LASER

| | | |
|-------------|---|-----------|
| I | ABLATION LASER ET FORMATION DU PLASMA | 33 |
| I.1 | MÉCANISMES FONDAMENTAUX D'ÉVAPORATION LASER | 33 |
| I.2 | FORMATION DU PLASMA | 34 |
| I.3 | EXPANSION DU PLASMA | 37 |
| I.4 | RECOMBINAISON | 39 |
| II | PROPRIÉTÉS CARACTÉRISTIQUES DES PLASMAS OBTENUS PAR ABLATION LASER | 41 |
| II.1 | LONGUEUR DE DEBYE | 42 |
| II.2 | PLASMA STATIQUE VERSUS PLASMA EN EXPANSION | 43 |
| II.3 | TAUX D'ABLATION | 44 |
| II.4 | TAUX D'IONISATION ET FRACTION IONIQUE | 44 |
| II.5 | DENSITÉ DU PLASMA | 45 |
| II.6 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 46 |
| II.7 | ÉNERGIE IONIQUE | 47 |
| III | PLASMAS ET CHAMP MAGNÉTIQUE | 49 |
| IV | RÉFÉRENCES | 49 |

Dans ce chapitre, je décris les différentes étapes du phénomène d'ablation et de la formation du plasma en dépôt laser pulsé. Puis je m'intéresse à l'évolution des propriétés du plasma lors du phénomène d'expansion. Dans la dernière partie de ce chapitre, je présente des résultats de caractérisation de plasmas générés par lasers, antérieurs à mon travail. Je termine par une revue des différentes applications d'un champ magnétique dans des techniques de dépôt mettant en jeu des plasmas.

I ABLATION LASER ET FORMATION DU PLASMA

Le dépôt laser pulsé s'est développé depuis *15 ans* environ comme une méthode adaptée au dépôt de couches de matériaux divers. La spécificité de cette technique est le fait que les espèces évaporées sont chauffées par le laser à des températures de l'ordre de quelques électron-Volts ($1 \text{ eV} \approx 10^4 \text{ K}$), elles deviennent fortement ionisées et forment un plasma à haute pression qui se détend alors au sein de la chambre d'ablation. Les divers constituants du plasma se déposent finalement sur un substrat faisant face à la cible (Fig. 1).

Dans ce paragraphe nous rappelons quels sont les mécanismes principaux qui régissent le mécanisme d'ablation, la formation du plasma puis son expansion.

I.1 Mécanismes fondamentaux d'évaporation laser

Les plasmas PLD sont générés en vaporisant, à l'aide d'impulsions nanosecondes de grande énergie ($\approx \text{GW cm}^{-2}$), une petite quantité de matériau. Dans la gamme de longueurs d'onde disponibles pour les lasers pulsés haute puissance ($\lambda \approx 0.2 - 1 \mu\text{m}$ dans le cas des lasers Nd:YAG), le coefficient d'absorption du rayonnement incident est généralement grand pour les métaux. L'absorption du faisceau incident est ainsi limitée à la surface de la cible (longueur d'absorption optique : $L_0 \approx 200 \text{ \AA}$). La radiation laser, fortement absorbée par les électrons de conduction, est convertie en énergie thermique par interaction électron-phonon en un temps caractéristique de l'ordre de 10^{-13} s . Une fine couche de matière évaporée se forme à la surface de la cible (atomes, molécules) [1]. La densité de la matière au sein de cette couche est proche de celle du solide ($10^{25} - 10^{27} \text{ m}^{-3}$ [2]), la température de l'ordre de 0.2 eV [3] ((Fig. 1 (a), (b), (c)). La couche ainsi formée absorbe presque intégralement les photons. Même à de faibles intensités, proches du seuil d'ablation ($\approx 0.2 \text{ GW cm}^{-2}$), elle devient fortement ionisée + e [4] [5] [6].

À la fin de l'impulsion laser, la matière évaporée est une fine couche de plasma sur la surface de la cible. La température des électrons est alors de l'ordre de quelques eV et la pression de l'ordre de *dizaines de kbar*. Le phénomène prépondérant à considérer alors est l'expansion du plasma. Celle-ci est principalement gouvernée par des gradients de pression au sein du plasma [3], mais la répulsion électrostatique entre les ions peut aussi jouer un rôle dans la mesure où le plasma est faiblement chargé positivement, suite à la perte d'électrons de haute énergie dans la phase initiale d'expansion [7].

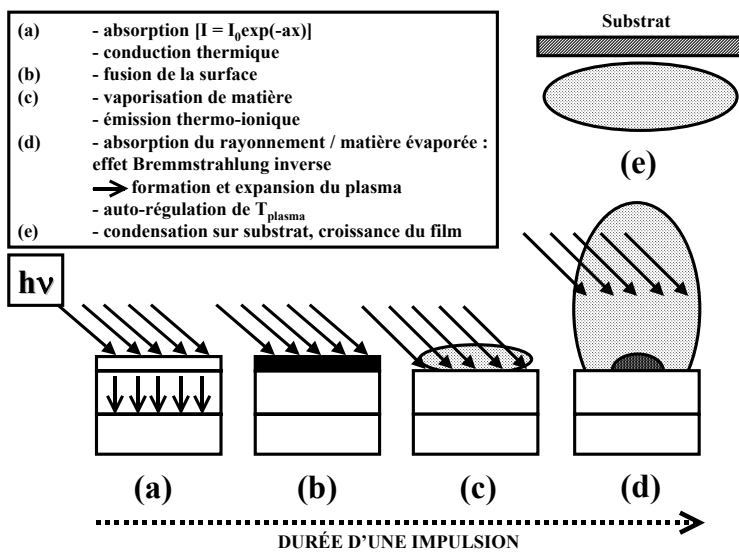


Fig. 1 : Illustration des étapes successives du mécanisme d'ablation et de dépôt laser pulsé : (1) l'interaction du faisceau laser avec la cible, (2) la formation du plasma, le chauffage, et l'expansion initiale isothermique tridimensionnelle, (3) l'expansion adiabatique, (4) le dépôt de matière sur le substrat.

Aux stades initiaux de formation du plasma, les effets de recombinaison constituent l'un des processus qui définissent l'état d'ionisation. Durant l'expansion, le taux de recombinaison est pratiquement négligeable, mais les quelques recombinaisons qui se produisent peuvent contribuer significativement à limiter le refroidissement du plasma [8].

I.2 Formation du plasma

À l'origine de la formation du plasma, se trouve l'émission d'électrons libres par la surface de la cible lorsque, sous l'effet de la radiation laser, celle-ci est portée à une température suffisamment élevée. Le flux d'électrons augmente exponentiellement avec la température de la cible (voir référence dans [9]). L'échauffement des électrons émis se produit ensuite par effet bremsstrahlung inverse, mettant en jeu l'absorption d'un photon par un

électron libre du plasma¹. Les électrons ainsi accélérés ionisent à leur tour les atomes neutres par collision. Il s'en suit un processus multiplicateur d'électrons (ionisation par effet d'avalanche). Dès ce stade initial de formation du plasma, l'énergie étant absorbée par les électrons à une température bien supérieure à la température de vaporisation de tous les éléments, les propriétés du plasma sont pratiquement indépendantes de l'élément considéré.

Sous l'effet des très fortes pressions qui accompagnent l'ablation, l'expansion du plasma commence. On est alors amené à distinguer deux régions du plasma en interaction avec la radiation laser (Fig. 2) [2] :

- ♦ zone C : près de la surface de la cible, plasma dense, absorbant la radiation laser,
- ♦ zone D : plasma en expansion, transparent au laser.

Les autres zones représentées sur la Fig. 2 correspondent au volume de la cible :

- ♦ zone A : non affectée par la radiation,
- ♦ zone B : correspondant à la zone de vaporisation.

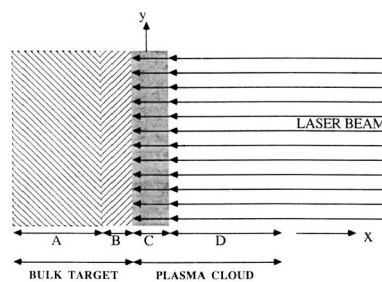


Fig. 2 : Schéma représentant les différentes régions de la cible et du plasma affectées par la radiation laser [2].

Les propriétés du plasma résultent alors d'un équilibre dynamique entre différents processus. L'absorption du faisceau laser, source fondamentale de la formation du plasma, l'expansion, source de refroidissement et de diminution de la densité du plasma, les effets de recombinaison, source de diminution du taux d'ions, mais aussi d'échauffement (voir Paragraphe I.4 p. 39). Il faut principalement considérer le fait que lorsque la densité de particules approche une densité critique, proche de la densité du solide, le plasma, d'abord opaque au rayonnement incident, devient totalement réfléchissant [11]. L'échauffement de la cible et le taux d'ionisation sont alors fortement réduits. Du fait de l'expansion, la densité du plasma diminue alors, ce dernier redevient transparent au rayonnement laser qui de nouveau

¹ Le bremsstrahlung est une collision inélastique entre un photon et un électron dans le champ d'un ion : $h\nu + e^- + (A^+) \rightarrow e^- + (A^+)$. Dans une collision de ce type, le photon disparaît et donc transfère sa quantité de mouvement et son énergie [10]. L'effet bremsstrahlung inverse est ainsi appelé car c'est physiquement l'inverse du processus par lequel les collisions des électrons avec les ions génèrent une radiation (photons) dans le plasma.

irradie la cible. La température du plasma est ainsi régulée à une valeur d'environ 10^4 à 10^5 K (1 à 10 eV) ([2] : les valeurs des températures reportées dans cette publication sont inférieures aux valeurs expérimentales, mais ceci résulte de la valeur de l'irradiance plus faible que dans la plupart des expériences).

Les propriétés caractéristiques du plasma (température électronique, T_e , densité électronique, n_e , taux d'ablation par unité de surface, dm/dt , et vitesse du son, v_s), vers la fin de l'impulsion laser, déterminées sur la base des considérations ci-dessus, dépendent des propriétés du rayonnement incident (irradiance² et longueur d'onde) plus que des propriétés du matériau (masse atomique, taux d'ionisation). Considérant la conservation de l'énergie lors de la transformation solide-plasma et que le plasma se propage à la vitesse du son, elles peuvent être exprimées par les relations suivantes [12] [3] :

$$T_e = 2.98 \times 10^3 \frac{A^{1/8} Z^{3/4}}{(Z+1)^{5/8}} (I \lambda \sqrt{\tau})^{1/2} \text{ (K)} \quad (1)$$

ou³ :

$$T_e \approx 3 \sqrt{I \lambda \tau}^{1/2} \text{ (eV)},$$

$$n_e = 1.135 \times 10^{15} \frac{A^{5/16}}{Z^{1/8} (Z+1)^{9/16}} \frac{I^{1/4}}{(\lambda \sqrt{\tau})^{3/4}} \text{ (m}^{-3}\text{)}, \quad (2)$$

$$\frac{dm}{dt} = 26.6 \frac{\psi^{9/8} I^{1/2}}{A^{1/4} (\lambda \sqrt{\tau})^{1/2}} \text{ (}\mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}\text{)} \quad (3)$$

avec :

$$\psi = \frac{A}{2 [Z^2 (Z+1)]^{1/3}},$$

² Dans la suite de ce manuscrit, nous parlerons de densité d'énergie (moyenne), F , en $J \text{ cm}^{-2}$, et d'irradiance (densité d'énergie instantanée), $I = F / \tau$, en $W \text{ cm}^{-2}$ (τ est la durée de l'impulsion laser en s).

³ Avec λ la longueur d'onde en cm , I l'irradiance sur la cible en $W \text{ cm}^{-2}$ et τ la durée de l'impulsion laser en s . Au stade initial de formation du plasma, la température électronique est théoriquement indépendante du matériau évaporé, le seul paramètre physique alors en jeu étant la section de diffusion inélastique des électrons du plasma.

et :

$$v_s = 4.33 \times 10^7 \frac{A^{1/8}}{\psi^{9/16}} (I \lambda \sqrt{\tau})^{1/4} (ms^{-1}), \quad (4)$$

$$v_s \approx \left(\frac{\gamma R T_e}{M} \right)^{1/2} (ms^{-1}),$$

où A représente la masse molaire en $g \text{ mol}^{-1}$ (exemple : 55.8 pour Fe), Z le taux d'ionisation ($Z = I$), I l'irradiance du faisceau laser sur la cible en $W \text{ m}^{-2}$, τ la durée de l'impulsion laser en s , λ la longueur d'onde de la radiation en m , γ la constante adiabatique du gaz plasma, égale au rapport des chaleurs spécifiques respectivement à volume constant et à pression constante, et $R (= 8.31 \text{ J K}^{-1} \text{ mole}^{-1})$ la constante des gaz parfaits.

I.3 Expansion du plasma

La phase d'expansion débute avant même la fin de l'impulsion laser [2] [13]. Le nuage de matière se détend dans une région proche de la surface de la cible. L'expansion est isothermique, la température du plasma pouvant être considérée comme homogène et constante, à travers les mécanismes de régulation que nous venons de décrire (Fig. 1 étape c p. 34).

Après la fin de l'impulsion laser, l'expansion devient adiabatique. La géométrie initiale du plasma est fortement anisotrope (la dimension perpendiculaire à la cible est 10 - 100 fois plus faible que les dimensions parallèles à la surface de la cible). Ceci favorise un échange de quantité de mouvement perpendiculairement à la surface de la cible : l'expansion est essentiellement unidirectionnelle [2]. Le plasma prend une forme de fuseau allongé (« plume ») selon la direction perpendiculaire à la cible (Fig. 1 étape d p. 34).

Pendant la propagation, l'énergie thermique des électrons et des ions est transformée en énergie cinétique (directive) essentiellement portée par les ions de masse bien plus importante [14] [15] [6]. Les électrons transfèrent leur énergie aux ions par des mécanismes de diffusion coulombienne. Dans ce type d'interaction, les libres parcours moyens sont de l'ordre de 10^{-1} , 10^{-2} , 10^{-3} m pour respectivement des collisions électron-ion, atome-atome, électron-atome [16] [17]. Pour ce qui concerne les interactions électrons-ions, le libre parcours moyen s'exprime $\lambda_{eiE} = v_{thermique(électrons)} \tau_{eiE}$, où τ_{eiE} est le temps de relaxation associé, tel que

$$\tau_{eiE} \propto \frac{T_e^{3/2}}{n_e \ln \Lambda}, \text{ [3] [18]}. (\Lambda = \frac{4}{3} \pi n_e \lambda_D^3 \text{ est le nombre de particules dans la sphère de Debye}$$

(voir Paragraphe II.1 p. 42). L'évolution de λ_{eiE} et τ_{eiE} avec la densité électronique, pour différentes température électronique, est représentée sur les Fig. 3 et Fig. 4 (p. 41). Dès que la densité électronique chute à 10^{22} m^{-3} , le libre parcours moyen des électrons ($\lambda_{eiE} \approx 200 \text{ cm}$) est bien supérieur à la taille caractérisant le phénomène de dépôt. Ainsi, les phénomènes d'échanges énergétiques sont négligeables, les nuages électroniques et ioniques sont découplés.

Du fait de l'expansion, la densité électronique du plasma, n_e , diminue, ainsi que sa température, T_e , reliée à la densité électronique par la relation classique ($n_e \approx n_i$, où n_i est la densité ionique⁴) :

$$T_e \propto n_e^{\gamma-1}, \quad (5)$$

où γ est la constante adiabatique du plasma.

L'expansion adiabatique du plasma a été étudiée théoriquement par Singh et Narayan [2]. Ces auteurs ont supposé que les équations qui la gouvernent sont identiques à celles régissant le régime d'expansion isothermique. Anisimov *et al.* [19] ont montré que cette approximation est insuffisante pour décrire correctement les comportements en jeu et ont développé une approche plus rigoureuse, mais qui suppose que le plasma est formé de particules neutres. La forme de la plume en expansion est déterminée par sa forme initiale et dépend de façon critique de la valeur du paramètre γ .

Au delà d'un temps qui est typiquement de 100 fois la durée de l'impulsion laser, la majeure partie de l'énergie thermique a été transformée en énergie cinétique. L'accélération des ions devient négligeable. Aux temps supérieurs, l'expansion des ions peut être considérée comme inertielle. La conservation de la masse nécessite que la position d'un élément du plasma, r , soit alors proportionnel au temps, t . Par conséquent, le volume de cet élément, V , est $\propto r^3 \propto t^3$, et la densité de particules, n , peut s'exprimer :

$$n \propto r^{-3} \propto t^{-3}. \quad (6)$$

Pour un gaz monoatomique, γ est égal à 5/3. On en déduit que [8] :

⁴ Dans la suite de ce manuscrit, toute variable concernant les électrons sera indexée par « e » et toute variable concernant les ions indexée par « i ».

$$T \propto r^{-2} \propto t^{-2}. \quad (7)$$

En général, γ est inférieur à 1.666, de l'ordre de 1.2 - 1.3, du fait des degrés de liberté supplémentaires existants, liés aux excitations et mécanismes possibles d'ionisation [20]. Il en résulte que la décroissance de température est bien inférieure à celle prévue par l'expression (7).

Dans le régime d'expansion inertielle, le profil du dépôt, $h(\theta)$, prévu par Anisimov *et al.* [19], peut être déterminé après intégration sur les énergies à chaque angle θ . $h(\theta)$ est donné par l'expression :

$$h(\theta) = \frac{Mk^2}{2\pi\rho_s z_s^2} \left(1 + k^2 \tan^2 \theta\right)^{-3/2}, \quad (8)$$

où ρ_s est la densité du matériau déposé, M la masse totale de matière évaporée dans le volume de la plume, k un coefficient décrivant la géométrie de la plume et qui dépend de la valeur de γ . $k = Z(t)/X(t)$ avec $X(t) = Y(t)$, où $X(t)$ et $Y(t)$ sont les dimensions du nuage plasmatique parallèlement à la surface de la cible, et $Z(t)$ la dimension dans la direction perpendiculaire. z_s correspond à la position du substrat selon la normale à la cible ($= d_{cible-substrat}$), et θ est l'angle entre la normale à la cible et la droite liant le centre de la cible au point considéré du dépôt. Cette expression indique que le dépôt est extrêmement directif. Aux faibles valeurs de θ , l'épaisseur de dépôt varie approximativement comme $\cos^n \theta$, où $n = 2k^2$ et $k \approx 3$ ($n \approx 20$).

I.4 Recombinaison

Deux types de recombinaison peuvent se produire au sein du plasma : la recombinaison radiative dans laquelle un électron et ion s'associent pour former un atome en libérant un photon⁵, et la recombinaison collisionnelle à trois-corps dans laquelle un électron et un ion se recombinent dans le champ d'un second électron⁶ [8] [3] [18]. Pour chacun de ces phénomènes, on peut définir des taux de recombinaison, respectivement radiatif, R_R , et à trois-corps, R_C , qui s'expriment :

⁵ $e^- + A^+ \rightarrow A + h\nu$.

⁶ $2e^- + A^+ \leftrightarrow A + e^-$. Son inverse est une ionisation collisionnelle. Ce sont des processus non-radiatif.

$$R_R = \left(\frac{dn_e}{dt} \right)_R = -\alpha_R n_e n_i \propto t^{-4/5} \quad \text{et} \quad R_C = \left(\frac{dn_e}{dt} \right)_C = -\alpha_C n_e^2 n_i \propto \text{constant}, \quad (9)$$

où $\alpha_R \propto T^{-3/4}$ et $\alpha_C \propto T^{-9/2}$, pour des ions chargés $+e$, avec T en eV et les densités ionique et électronique n_i et n_e en m^{-3} . La recombinaison à trois-corps devient prédominante sur la recombinaison radiative pour une densité électronique $n_e \gg \frac{3 \times 10^{19} T_e^{3.75}}{Z} m^{-3}$ [8] ($Z = 1$).

Ces taux de recombinaison doivent être comparés au taux $R_{\text{expansion}}$ décrivant la décroissance de densité accompagnant l'expansion :

$$R_{\text{expansion}} = \left(\frac{dn_e}{dt} \right)_{\text{expansion}} \propto t^{-4}. \quad (10)$$

La recombinaison ne joue un rôle que dans la mesure où l'un des taux, R_C dans le cas présent, est supérieur à $R_{\text{expansion}}$. Cette condition est satisfaite pour les valeurs expérimentales typiques : la densité initiale du plasma étant élevée ($\approx 10^{27} m^{-3}$) et la température relativement faible ($T_e \approx 1 eV$). Du fait de la chute de densité électronique due à l'expansion, les effets de recombinaison à trois-corps deviennent faibles à une distance de quelques cm de la cible ($n_e \approx 10^{18} m^{-3}$ et $T_e \approx 1 eV$). Le libre parcours moyen, λ_C , est alors de l'ordre de $10^6 m$, le temps d'échange associé, $\tau_C \propto \frac{T_e^{9/2}}{n_e^2}$, de l'ordre de $20 s$ (Fig. 3 et Fig. 4).

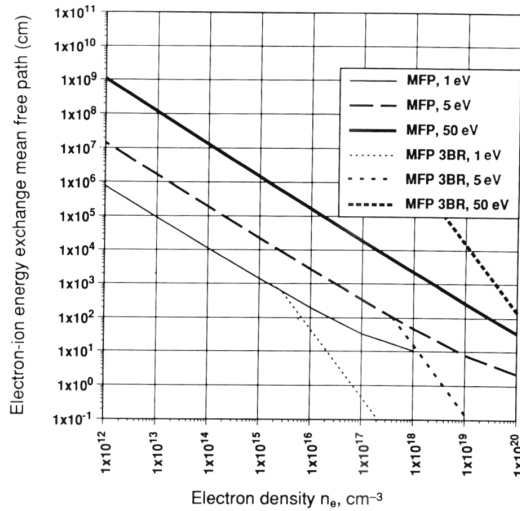


Fig. 3 : Libre parcours moyen coulombien (λ_{eiE}) et libre parcours moyen provenant de la recombinaison à trois corps (λ_C) dans le cas d'un plasma contenant des ions cuivre ionisés + e, en fonction de la densité électronique à différentes température électronique, calculés [3].

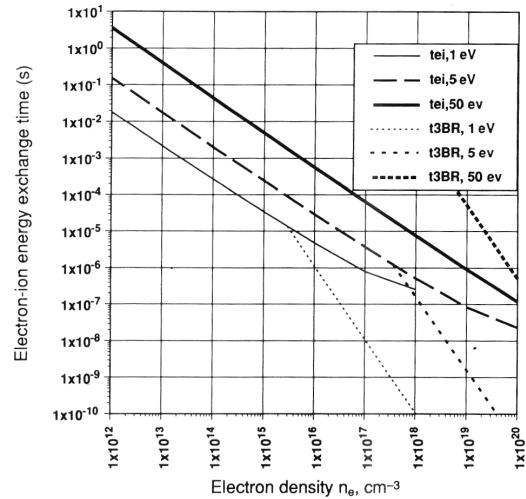


Fig. 4 : Temps d'échange énergétique coulombien (τ_{eiE}) et provenant de la recombinaison à trois corps (τ_C) dans le cas d'un plasma contenant des ions cuivre ionisés + e, en fonction de la densité électronique à différentes température électronique, calculés [3].

II PROPRIÉTÉS CARACTÉRISTIQUES DES PLASMAS OBTENUS PAR ABLATION LASER

Nous serons amenés dans la suite de ce manuscrit à utiliser la longueur de Debye, une propriété importante de tous types de plasma. J'explique au début de cette section quelle est la signification physique de la longueur de Debye. Je précise ensuite en quoi un plasma en expansion, tel qu'obtenu par ablation laser, diffère d'un plasma thermique statique habituel. Je décris enfin quelques propriétés caractéristiques de plasmas de métaux générés par laser, par des impulsions d'une durée de quelques ns, délivrant une densité d'énergie de l'ordre du $GW\text{ cm}^{-2}$. Je présente en particulier des exemples de températures électroniques et de distributions énergétiques des ions, mesurées par des techniques de sonde de Langmuir (voir Chapitre 3) ou de spectroscopie optique en temps de vol.

II.1 Longueur de Debye

La tendance à la neutralité électrique est une des caractéristiques de base d'un plasma. Dès que, au sein d'un volume macroscopique, les densités de charges négatives et positives diffèrent un peu, de grandes forces électrostatiques se développent, entraînant une forte augmentation de l'énergie potentielle par particule. Les particules chargées tendent à se mouvoir rapidement en retour pour réduire ces différences de potentiel. La « longueur de Debye » définit la distance sur laquelle des écarts à la neutralité peuvent exister du fait de l'agitation thermique agissant sur les électrons du plasma.

Un modèle simplifié permet d'estimer les dimensions sur lesquelles de tels écarts sont possibles. Soient n_i et n_e , les densités ionique et électronique au sein du plasma. Initialement, $n_0 = n_e = n_i$. Imaginons un déplacement unidimensionnel des électrons sur la distance d , selon l'axe y (Fig. 5) (les ions, de masse beaucoup plus importante, sont supposés immobiles). Le travail, W , lié à ce déplacement correspond au travail nécessaire à la création d'une région où règne une densité de charge strictement positive définie telle que : $\rho_0 = n_0 e$ entre les plans $y = 0$ et $y = d$. Le champ électrique, \vec{E} , créé par la distribution de charges ρ_0 est déduit de l'équation de Poisson. Par intégration, on obtient W :

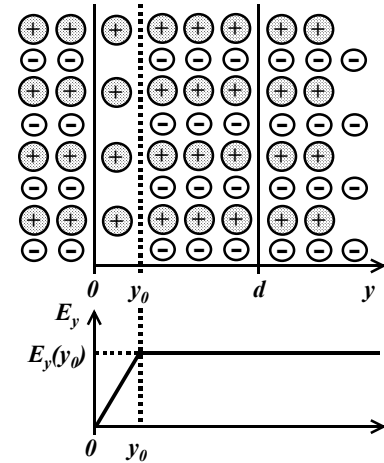


Fig. 5 : Schématisation du déplacement unidimensionnel des électrons.

$$W = \frac{n_0 e^2 d^2}{\epsilon_0 2}. \quad (11)$$

À la température T , une source de travail possible est l'agitation thermique. La distance associée sur laquelle un écart à la neutralité peut se produire est par définition la longueur de Debye, λ_D . Elle est déduite de l'expression :

$$\frac{n_0 e^2 \lambda_D^2}{\epsilon_0 2} = \frac{k_B T}{2}. \quad (12)$$

Soit,
$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T}{n_0 e^2}},$$

où $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$ est la permittivité du vide, $k_B = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ la constante de Boltzmann et $e = 1.6 \times 10^{-19} \text{ C}$ la charge élémentaire de l'électron.

Dans les plasmas générés par laser, T_e étant de l'ordre de 1 eV , λ_D , dépend essentiellement de n_0 . Pour des densités typiques (10^{14} à 10^{18} m^{-3} à quelques cm de la cible), elle est classiquement de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-6} m . Des valeurs de λ_D (déterminée à partir de la relation (12) après détermination de T_e et n_e déduits de mesures de sonde de Langmuir) de 1 à $7 \mu\text{m}$ ont été reportées pour un plasma Cu évaporée par une radiation de 5.5 J cm^{-2} et déposé à une distance cible-substrat de 5 cm [21] ; des valeurs d'environ $5 \mu\text{m}$ à une distance de 2 cm sont données pour une cible de Cu irradiée par un faisceau laser délivrant 2.5 J cm^{-2} [17].

Ainsi, le mouvement thermique des électrons engendre localement une charge d'espace. Des forces électriques sont alors engendrées au sein du plasma qui tendent à rétablir la neutralité électrique. Sous les effets conjugués de ces forces et de l'agitation thermique, on montre que le plasma se met à osciller à une fréquence propre qui dépend de la densité électronique :

$$f_{p,e} = \frac{1}{\tau_{p,e}} = \frac{\omega_{p,e}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e}} \approx 8.97 \sqrt{n_e}, \quad (13)$$

avec $m_e = 9.1 \times 10^{-31} \text{ kg}$ la masse de l'électron. Ce qui représente une période d'oscillations, $\tau_{p,e}$, de 0.1 ns , pour $n_e = 10^{18} \text{ m}^{-3}$.

II.2 Plasma statique versus plasma en expansion

Au sein d'un plasma strictement statique, le mouvement des ions et des électrons est déterminé par la statistique de Maxwell-Boltzmann (Fig. 6 (a)). Les plasmas générés par laser qui nous intéressent dans cette étude sont en expansion (Fig. 6 (b)). À l'agitation thermique se rajoute une vitesse de dérive qui est de l'ordre de 10^4 m s^{-1} .

La vitesse instantanée des électrons pour une température de 10^4 K , est de l'ordre de 10^5 m s^{-1} . Leur mouvement est donc dominé par l'agitation thermique. Du point de vue des électrons, il n'y a pas de différence essentielle par rapport à un plasma statique.

La vitesse instantanée des ions résultant de l'agitation thermique est de l'ordre de 10^3 m s^{-1} pour une température de 10^4 K . Le mouvement des ions est donc pratiquement déterminé par le phénomène d'expansion.

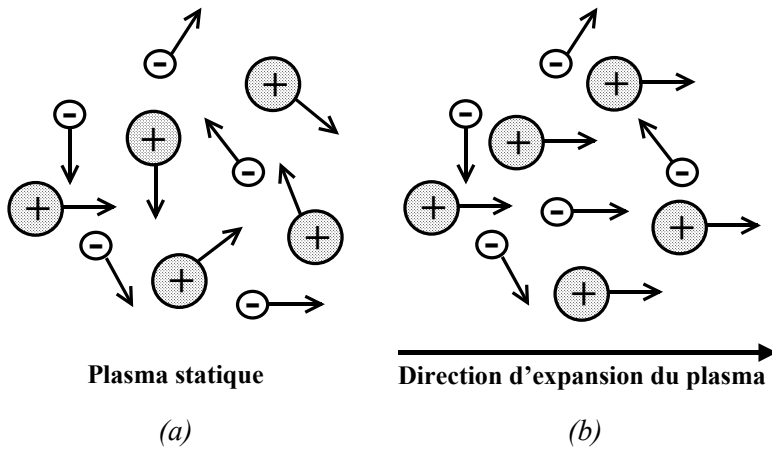


Fig. 6 : Schématisation du mouvement des ions et des électrons dans (a) un plasma statique, (b) un plasma en expansion.

II.3 Taux d'ablation

Au voisinage du seuil d'ablation, le taux d'ablation est directement lié à la valeur de la température de fusion. Des études de spectrométrie de masse [22] ou une simple détermination de la perte de masse de la cible par pesée [23] ont permis de déterminer le taux d'ablation de divers plasmas. La Fig. 7 représente, d'après la référence [23], la quantité de particules évaporées en fonction de la température de fusion de différents métaux, à densité d'énergie fixe. On observe une nette décroissance du taux d'ablation lorsque la température de fusion augmente. À plus forte irradianance ($\approx 10 \text{ GW cm}^{-2}$), le taux d'ablation dépend principalement des propriétés de la radiation laser incidente sur la cible (voir Paragraphe I et [3]). En effet, la structure moléculaire ou même chimique du matériau évaporé est alors détruite. Cette tendance a aussi été observé pour une radiation de 1064 nm sur des cibles de *Al, Ti, Ni, Cu, Ta, W, Au, Pb*, évaporées à 146 J cm^{-2} [22].

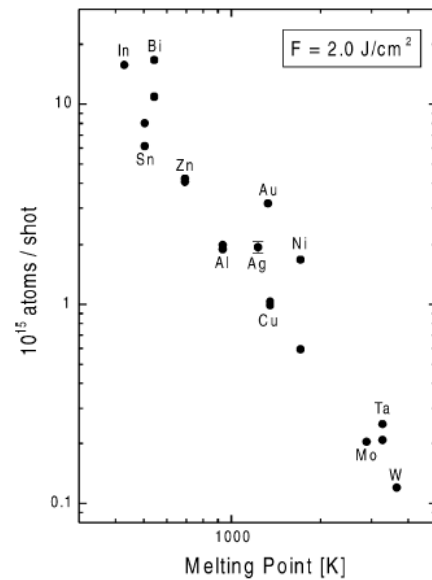


Fig. 7 : Nombre d'atomes évaporés par impulsion en fonction de la température de fusion, T_f pour différents métaux. $\lambda = 355 \text{ nm}$, $F = 2 \text{ J cm}^{-2}$. T_f est une mesure de la volatilité du métal [23].

II.4 Taux d'ionisation et fraction ionique

Au voisinage du seuil d'ablation F_s , le taux d'ionisation du plasma est faible (< 0.1), il augmente rapidement à des valeurs de 0.5 à 0.8 dès que la densité d'énergie atteint des valeurs

de l'ordre de 2 à 3 F_S . La quantité d'ions, mesurée à l'aide de sondes électrostatiques ou de spectromètres de masse, a permis de déterminer le taux d'ionisation de plasmas de divers éléments, par comparaison avec le taux d'ablation total. Le seuil d'ablation de *Cu* est de l'ordre de $1 J cm^{-2}$ [24]. Comme F passe de 2 à $5 J cm^{-2}$, le taux d'ionisation augmente jusqu'à 0.8 [7] [5]. Il est égal à 1 quand $F = 15 J cm^{-2}$ [9]. Des résultats similaires ont été trouvés pour des plasmas de *Fe*, *Al* et *Ag* (fraction ionique de 0.6 pour ces deux derniers métaux évaporés à $F = 2 J cm^{-2}$) [25] [26] [23].

Par ailleurs, aux grandes densités d'énergie, on observe la présence d'ions de fraction ionique $> + e$ [27]. Des espèces ionisées jusqu'à $+ 4 e$, portant une énergie de 300 - 400 eV, ont été détectés pour des densités d'énergie de $290 J cm^{-2}$, grâce à un spectromètre de masse, dans un plasma *Fe* [28] [24]. De même pour un plasma *Cu* : à $3 J cm^{-2}$, des mesures de temps de vol ont révélé l'existence de 3 pics énergétiques à 45, 20, et 2.5 eV [29]. Nassisi *et al.* [30] reporte un plasma *Cu* généré à $2.4 J cm^{-2}$ contenant très majoritairement des ions Cu^+ mais aussi quelques ions Cu^{2+} (en proportion négligeable), ayant des distributions énergétiques centrées respectivement sur 60 et 180 eV.

II.5 Densité du plasma

Diverses techniques ont été utilisées pour mesurer la densité d'un plasma d'ablation laser. Les études effectuées avec des sondes électrostatiques sont les plus nombreuses mais les techniques de diffusion de photon ou d'interférométrie micro-ondes [8] sont également utilisées. n_0 (égale aux densités n_e et n_i) vaut $10^{25} - 10^{27} m^{-3}$ au niveau de la cible [2], elle diminue rapidement lorsque la distance à la cible augmente. Par exemple, un plasma *Cu* atteint des densités de l'ordre de $10^{12} m^{-3}$ à 5 cm pour une cible irradiée par une énergie de $5.5 J cm^{-2}$ [21], de l'ordre de $10^{18} m^{-3}$ à 10.7 cm si $F \approx 10 J cm^{-2}$ [31].

Les distributions angulaires de la densité électronique, n_e , et ionique, n_i , ont été mesurées par des sondes de Langmuir en mode temps de vol placées à différents angles selon la normale à la cible. Un seul groupe, à notre connaissance, a montré que n_e suit la même variation angulaire que n_i , ce qui est attendu d'un plasma quasi-neutre [32] [33]. Ces auteurs reportent des densités électroniques et ioniques variant toutes deux de $\approx 4 \times 10^{17} m^{-3}$, à 5° de la normale à la cible, à $\approx 2 \times 10^{16} m^{-3}$ à un angle de 40°, pour un plasma d'argent évaporé à $0.8 J cm^{-2}$ et caractérisé à une distance cible-substrat de 8 cm.

II.6 Température électronique

Au niveau du substrat ($d_{cible-substrat}$ de l'ordre de quelques cm et F de quelques $J\ cm^{-2}$), la plupart des études de la température électronique, T_e , en mode temps de vol, ont été effectuées le long de la normale à la cible. Des valeurs de 0.2 à $1\ eV$ sont reportées pour des densités électroniques de l'ordre de $10^{18}\ m^{-3}$ et des temps de vol de $5\ \mu s$ (temps correspondant au pic de temps de vol des distributions temporelles), dans divers plasmas d'ablation : C à $d_{cible-sonde} = 2 - 14\ cm$ [8], Cu à $d_{cible-sonde} = 2 - 4\ cm$ [17] et à $d_{cible-sonde} = 5\ cm$ [21], Ag à $d_{cible-sonde} = 8\ cm$ [33]. Des températures supérieures ont été reportées, 1 à $12\ eV$, mais pour des temps de vol de $\approx 1\ \mu s$ (donc pour des espèces rapides du plasma) d'un plasma Cu à $d_{cible-sonde} = 10.7\ cm$ [31] ou pour une densité d'énergie beaucoup plus élevée ($F = 900\ J\ cm^{-2}$) lors de l'ablation de Cu, Ti, Al à $d_{cible-sonde} = 15 - 50\ cm$ [34].

La Fig. 8 représente l'évolution temporelle de T_e d'un plasma Ag d'après la référence [32]. La température instantanée atteint son maximum ($\approx 0.30\ eV$ vers $7 - 8\ \mu s$) au moment où le maximum du signal ionique est collecté par la sonde (vers $6\ \mu s$) pour diminuer ensuite lentement jusqu'à des valeurs de l'ordre de $0.10\ eV$. L'expansion adiabatique du système expliquerait cette variation temporelle [33]. Toutefois, l'amplitude de la distribution est très faible. Weaver *et al.* [21] suggère que la contribution électronique de la température serait constante puisque la notion de plume quasi-isotherme pour tous temps de vol n'est pas à écarter. Quoi qu'il en soit, le manque de données expérimentales concernant l'évolution temporelle de T_e ne permet pas de conclure.

Par contre, le résultat important est que les électrons thermiques accompagnant les ions portent seulement une petite fraction de l'énergie de la plume.

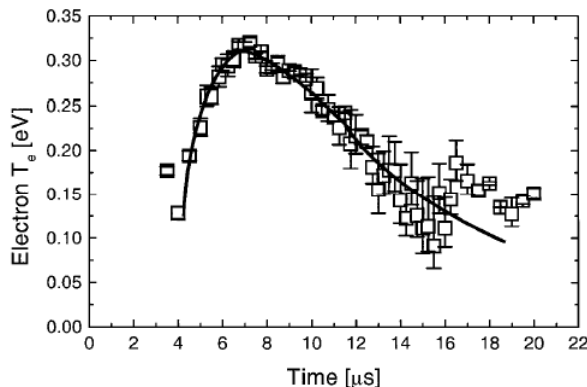


Fig. 8 : Variation temporelle de T_e pour un plasma d'argent généré par laser. $\lambda = 355\ nm$, $d_{cible-sonde} = 8\ cm$, $F = 0.8\ J\ cm^{-2}$, $\theta = 15^\circ$. La ligne est un guide pour les yeux [32]. La sonde de Langmuir utilisée est de type planaire.

La distribution angulaire de la température a été mesurée à l'aide de sondes de Langmuir placées à plusieurs angles par rapport à la normale à la cible, à $d_{cible-sonde} = 8 \text{ cm}$. T_e d'un plasma Ag évaporées à 0.8 J cm^{-2} est très faiblement dépendant de l'angle avec la normale à la cible : les électrons ne sont plus refroidis par l'expansion, à quelque mm de la surface de la cible, étant collisionnellement découplés des ions gouvernant l'expansion [32]. Toutefois, des mesures à une densité d'énergie plus élevée (1.3 J cm^{-2}) montrent une décroissance de faible amplitude de T_e avec l'angle, qui est expliquée par le phénomène d'expansion inertielle décrit dans le Paragraphe I.3 (p. 37) [33].

II.7 Énergie ionique

Des mesures de sondes de Langmuir ou de spectrométrie de masse ont permis de déterminer l'énergie des espèces incidentes le long de la normale à la cible ainsi que l'énergie moyenne des ions de la plume. Des énergies moyennes variant de 25 à 160 eV pour des ions Fe^+ alors que F variait de 0.6 à 290 J cm^{-2} [28] [24] ont été reportées. Des résultats similaires ont été obtenus pour un plasma Fe , l'énergie moyenne de Fe^+ augmente de 20 à 150 eV quand F varie de 2.2 à 5.4 J cm^{-2} [35]. Les distributions énergétiques des divers ions $+e$ d'une cible de $BiSrCaCuO$ (évaporée sous vide), varient de $0 - 20 \text{ eV}$ à 1 J cm^{-2} , pour atteindre des valeurs $> 300 \text{ eV}$ à des densités d'énergie plus élevées (4 J cm^{-2}) [36]. Un plasma d'aluminium présente une énergie moyenne de 30 à 500 eV quand la densité d'énergie passe de 4 à 10 J cm^{-2} [37]. À titre d'exemple, la Fig. 9 (p. 48) représente la distribution énergétique d'ions Ag^+ ($d_{cible-sonde} = 8 \text{ cm}$, $F = 1.9 \text{ J cm}^{-2}$), d'énergie moyenne de 50 eV [26].

De la même manière, des espèces pouvant avoir des énergies très grandes, $> 100 \text{ eV}$, le long de la normale à la cible ont été détectées : Cu [4] [5] [38], $YBa_2Cu_3O_7$ [39], Fe [25], Ag [6]. Notons que cette énergie est une spécificité du dépôt laser pulsé et qu'elle influence le mécanisme de croissance des films.

La distribution angulaire de l'énergie des ions a été étudiée par quelques groupes, grâce à une assemblée de collecteurs d'ions placées suivant différents angles suivant la normale à la cible, de plasmas Ag [26] [6] [33], ou bien de nombreux autres métaux dont Al , Cu , W [40], Al , Ag et Bi [23], Cu [30]. La Fig. 10 représente les distributions énergétiques d'un plasma d'argent en fonction de l'angle avec la normale à la cible. Notons la présence d'ions particulièrement énergétiques ($200 - 500 \text{ eV}$) à des angles proches de la normale à la cible, une énergie moyenne de 5 eV à 75° atteignant 120 eV à 7.5° . Des mesures de temps de vol sur

des plasmas *C*, *Al*, *Ni* et *Ta*, générés par une radiation de 1064 nm , de puissance instantanée 10^{10} à 10^{11} W cm^{-2} , et à $d_{\text{cible-sonde}} = 37.5\text{ cm}$, ont montré que 90 % des ions étaient émis dans un angle de 10° centré sur la normale à la cible [41].

La Fig. 11 montre la distribution angulaire (obtenue en intégrant numériquement le signal collecté par la sonde à différents angles selon la normale à la cible), à densité d'énergie fixe, de différents ions métalliques (Al^+ , Ag^+ , Bi^+) d'après la référence [23]. Le profil de dépôt prévu par le modèle d'Anisimov *et al.* [19] est superposé aux points expérimentaux, ce qui indique que ce modèle d'expansion adiabatique isotrope décrit bien la distribution angulaire des ions. On trouve une constante adiabatique $\gamma = 1.25$ pour les 3 métaux.

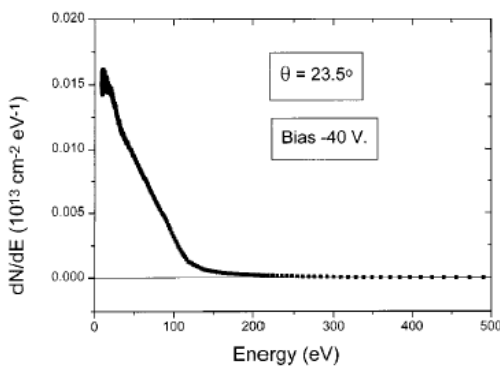


Fig. 9 : Distribution énergétique d'ions Ag^+ calculée à partir du spectre de temps de vol enregistré par la sonde. $V_b = -40\text{V}$, $\theta = 23.5^\circ$, $\lambda = 355\text{ nm}$, $F = 1.9\text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 8\text{ cm}$ [26].

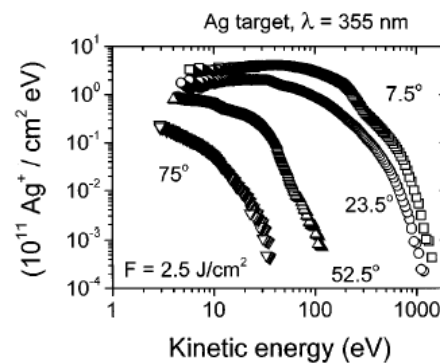


Fig. 10 : Distribution énergétique d'ions Ag^+ en fonction de θ . $V_b = -40\text{V}$, $\lambda = 355\text{ nm}$, $F = 2.5\text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 8\text{ cm}$ [6].

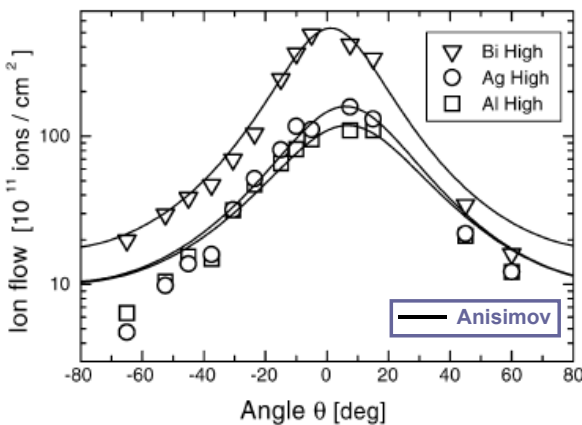


Fig. 11 : Distributions angulaires d'ions Al^+ , Ag^+ et Bi^+ . $F = 2.5\text{ J cm}^{-2}$, $V_b = -40\text{ V}$, $\lambda = 355\text{ nm}$ et $\tau = 6\text{ ns}$. 13 sondes de Langmuir cylindriques sont placées circulairement à $d_{\text{cible-sonde}} = 8\text{ cm}$ telles que θ varie de 5° à 65° . Chaque point a été obtenu en intégrant numériquement le signal de temps de vol collecté par la sonde. Les lignes représentent le profil de dépôt prévu par le modèle d'Anisimov (décrit p. 39) [23].

III PLASMAS ET CHAMP MAGNÉTIQUE

Le confinement d'un plasma par un champ magnétique par l'intermédiaire de la force de Lorentz (voir Chapitre 4 Paragraphe I p. 103) est un phénomène étudié depuis longtemps [42] [43]. En particulier, de nombreux travaux, liés au confinement de plasmas dans des dispositifs de fusion, ont été effectués [44] [45] [46].

Du point de vue de la science des matériaux, des champs magnétiques ont été utilisés en pulvérisation cathodique pour augmenter le rendement de pulvérisation. Mais sur un plasma de matière à déposer, la première utilisation a concerné les plasmas d'arc [47] [48] [49] [50] [51] [52] [53]. Une fois formé, le plasma partiellement ionisé est guidé à travers un « filtre magnétique » linéaire ou courbé ($B \approx \text{quelques mT}$) généré par une portion de bobine ou un ensemble d'aimants permanents, jusqu'à son dépôt sur un substrat. L'objectif principal est de supprimer les particules de tailles microniques générés lors de la formation du plasma et qui polluent les films [54].

La même approche a été appliquée au dépôt laser pulsé. Des champs magnétiques jusqu'à $0.5 T$ ont permis de dévier la trajectoire de 25 % des ions du plasma et de déposer des films exempts de gouttelettes microniques [55] [56] [57]. Un champ magnétique inhomogène de $1 T$ a été appliqué à l'aide d'aimants permanents placés perpendiculairement à la cible lors du dépôt de films de nitrure de bore, l'épaisseur des films a ainsi été multiplié par 2 en présence de champ magnétique [58].

Ces études concernent des aspects pratiques de l'utilisation d'un champ magnétique dans les méthodes de préparation de films exploitant le dépôt de la matière d'un plasma. À notre connaissance, aucune étude à ce jour ne s'est intéressée à la caractérisation physique d'une plume générée par laser soumise à un champ magnétique.

IV RÉFÉRENCES

- 1 **H.E. Elsayed-Ali, T.B. Norris, M.A. Pessot et G.A. Mourou**, *Time-resolved observation of electron-phonon relaxation in copper*. Phys. Rev. Lett., 58(12) (1987) p. 1212-1215.
- 2 **R.K. Singh et J. Narayan**, *Pulsed-laser evaporation technique for deposition of thin films : Physics and theoretical model*. Phys. Rev. B, 41(13) (1990) p. 8843-8859.
- 3 **C.R. Phipps et R.W. Dreyfus**, *Laser ablation and plasma formation (Chap. 4 : The high laser irradiance regime)*, dans *Laser ionization mass analysis*, A. Vertes, R. Gijbels et F. Adams, Editors (1993) John Wiley and Sons New York, p. 369-431.
- 4 **P.E. Dyer**, *Electrical characterization of plasma generation in KrF laser Cu ablation*. Appl. Phys. Lett., 55(16) (1989) p. 1630-1632.

- 5 **R. Jordan, D. Cole, J.G. Lunney, K. Mackay et D. Givord**, *Pulsed laser ablation of copper*. Appl. Surf. Sci., 86 (1995) p. 24-28.
- 6 **T.N. Hansen, J. Schou et J.G. Lunney**, *Angle-resolved energy distributions of laser ablated silver ions in vacuum*. Appl. Phys. Lett., 72(15) (1998) p. 1829-1831.
- 7 **R.W. Dreyfus**, Cu^0 , Cu^+ , and Cu_2 from excimer-ablated copper. J. Appl. Phys., 69(3) (1991) p. 1721-1729.
- 8 **P.T. Rumsby et J.W.M. Paul**, *Temperature and density of an expanding laser produced plasma*. Plasma Phys., 16 (1974) p. 247-260.
- 9 **F. Robaut**, *Élaboration par dépôt laser pulsé et caractérisation de couches minces épitaxiées de métaux de terres rares et de composés intermétalliques terre rare-cobalt*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1995).
- 10 **J.L. Delcroix et A. Bers**, *Physique des plasmas (1994)* Savoirs actuels, CNRS Editions, Paris.
- 11 **J. Hermann, C. Boulmer-Leborgne, I.N. Mihailescu et B. Dubreuil**, *Multistage plasma initiation process by pulsed CO₂ laser irradiation of a Ti sample in an ambient gas (He, Ar, or N₂)*. J. Appl. Phys., 73(3) (1992) p. 1091-1099.
- 12 **C.R. Phipps, T.P. Turner, R.F. Harrison, G.W. York, W.Z. Osborne, G.K. Anderson, X.F. Corlis, L.C. Haynes, H.S. Steele, K.C. Spicochi et T.R. King**, *Impulse coupling to targets in vacuum by KrF, HF, and CO₂ single-pulse lasers*. J. Appl. Phys., 64(3) (1988) p. 1083-1096.
- 13 **R.M. Gilgenbach et P.L.G. Ventzek**, *Dynamics of excimer laser-ablated aluminium neutral atom plume measured by dye laser resonance absorption photography*. Appl. Phys. Lett., 58(15) (1991) p. 1597-1599.
- 14 **A.F. Haught et D.H. Polk**, *Formation and heating of laser irradiated solid particle plasmas*. Phys. Fluids, 13(11) (1970) p. 2825-2841.
- 15 **J.P. Zheng, Z.Q. Huang, D.T. Shaw et H.S. Kwok**, *Generation of high-energy atomic beams in laser-superconducting target interactions*. Appl. Phys. Lett., 54(3) (1989) p. 280-282.
- 16 **M.C.M. van de Sanden**, www.ep2.ruhr-uni-bochum.de/CLTPP/notes/02_sanden.pdf.
- 17 **J.M. Hendron, C.M.O. Mahony, T. Morrow et W.G. Graham**, *Langmuir probe measurements of plasma parameters in the late stages of a laser ablated plume*. J. Appl. Phys., 81(5) (1997) p. 2131-2134.
- 18 **S. Amoruso, R. Bruzzese, N. Spinelli et R. Velotta**, *Characterization of laser-ablation plasmas*. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., 32 (1999) p. R131-R172.
- 19 **S.I. Anisimov, D. Bäuerle et B.S. Luk'yanchuk**, *Gas dynamics and film profiles in pulsed-laser deposition of materials*. Phys. Rev. B, 48(16) (1993) p. 12076-12081.
- 20 **B. Toftmann, J. Schou et J.G. Lunney**, *Dynamics of the plume produced by nanosecond ultraviolet laser ablation of metals*. Phys. Rev. B, 67(10) (2003) p. 104101/1-5.
- 21 **I. Weaver, G.W. Martin, W.G. Graham, T. Morrow et C.L.S. Lewis**, *The Langmuir probe as a diagnostic of the electron component within low temperature laser ablated plasma plumes*. Rev. Sci. Instrum., 70(3) (1999) p. 1801-1805.
- 22 **L. Torrisi, G. Ciavola, S. Gammino, L. Andò, A. Barnà, L. Láska et J. Krása**, *Metallic etching by high power Nd:yttrium-aluminum-garnet pulsed laser irradiation*. Rev. Sci. Instrum., 71(11) (2000) p. 4330-4334.
- 23 **B. Thestrup, B. Toftmann, J. Schou, B. Doggett et J.G. Lunney**, *Ion dynamics in laser ablation plumes from selected metals at 355 nm*. Appl. Surf. Sci., 197-198 (2002) p. 175-180.

- 24 **O.F.K. Mc Grath**, *Structural and magnetic properties of epitaxial W/Fe/W and Gd/Fe films grown by pulsed laser deposition*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1994).
- 25 **D. Cole, R. Jordan, J.G. Lunney et J.M.D. Coey**, *Pulsed laser deposition of Fe thin films in UHV*. J. Magn. Magn. Mater., 165 (1997) p. 246-249.
- 26 **T.N. Hansen, J. Schou et J.G. Lunney**, *Angular distributions of silver ions and neutrals emitted in vacuum by laser ablation*. Europhys. Lett., 40(4) (1997) p. 441-446.
- 27 **K.L. Saenger**, *Angular distribution of ablated material*, dans *Pulsed laser deposition of thin films*, D.B. Chrisey et G.K. Hubler, Editors (1994) John Wiley and Sons, New York, p. 199-227.
- 28 **N. Cherief, D. Givord, O.F.K. Mc Grath, Y. Otani et F. Robaut**, *Laser ablation deposition of metallic films and bilayers (Fe, Rare Earth and RE / Fe bilayers)*. J. Magn. Magn. Mater., 126(1-3) (1993) p. 225-231.
- 29 **E. van de Riet, J.C.S. Kools et J. Dieleman**, *Incongruent transfer in laser deposition of FeSiGaRu thin films*. J. Appl. Phys., 73(12) (1993) p. 8290-8296.
- 30 **V. Nassisi et A. Pedone**, *Physics of the expanding plasma ejected from a small spot illuminated by an ultraviolet pulsed laser*. Rev. Sci. Instrum., 74(1) (2003) p. 68-72.
- 31 **R.J. von Gutfeld et R.W. Dreyfus**, *Electronic probe measurements of pulsed copper ablation at 248 nm*. Appl. Phys. Lett., 54(13) (1989) p. 1212-1214.
- 32 **B. Toftmann, J. Schou, T.N. Hansen et J.G. Lunney**, *Angular distribution of electron temperature and density in a laser-ablation plume*. Phys. Rev. Lett., 84(17) (2000) p. 3998-4001.
- 33 **B. Toftmann, J. Schou, T.N. Hansen et J.G. Lunney**, *Evolution of the plasma parameters in the expanding laser ablation plume of silver*. Appl. Surf. Sci., 186 (2002) p. 293-297.
- 34 **D.W. Koopman**, *Langmuir probe and microwave measurements of the properties of streaming plasmas generated by focused laser pulses*. Phys. Fluids, 14(8) (1971) p. 1707-1716.
- 35 **R. Jordan et J.G. Lunney**, *Investigation of excimer laser ablation of iron*. Appl. Surf. Sci., 127-129 (1998) p. 968-972.
- 36 **G.C. Tyrrell, T.H. York et I.W. Boyd**, *Characterisation of ionic species generated during ablation of Bi₂Sr₂Ca₂Cu₃O₁₀*. Appl. Surf. Sci., 86 (1995) p. 50-58.
- 37 **S. Amoroso**, *Modelling of laser produced plasma and time-of-flight experiments in UV laser ablation of aluminium targets*. Appl. Surf. Sci., 138-139 (1999) p. 292-298.
- 38 **J.G. Lunney**, *Pulsed laser deposition of metal and metal multilayer films*. Appl. Surf. Sci., 86 (1995) p. 79-85.
- 39 **J.G. Lunney, J.F. Lawler et R. Aratari**, *Ion emission studies of pulsed laser evaporation of YBa₂Cu₃O₇*. J. Appl. Phys., 74(6) (1993) p. 4277-4279.
- 40 **L. Láska, J. Krása, M. Pfeifer, K. Rohlena, S. Gammino, L. Torrisi, L. Andò et G. Ciavola**, *Angular distribution of ions emitted from Nd:YAG laser-produced plasma*. Rev. Sci. Instrum., 73(2) (2002) p. 654-656.
- 41 **A. Thum-Jaeger, B.K. Sinha et K.P. Rohr**, *Time of flight measurements on ion-velocity distribution and anisotropy of ion temperatures in laser plasmas*. Phys. Rev. E, 63(1) (2000) p. 016405/1-10.
- 42 **F.F. Chen**, *Electric probes*, dans *Plasma diagnostics techniques*, B.H. Huddlestone et S.L. Leonard, Editors (1965) Academic Press New York, p. 113-200.
- 43 **F.F. Chen**, *Introduction to plasma physics and controlled fusion*. Vol.1, Plasma physics (1984) Plenum Press, New York.

- 44 **P.C. Stangeby**, *Effect of bias on trapping probes and bolometers for tokamak edge diagnosis*. J. Phys. D : Appl. Phys., 15 (1982) p. 1007-1029.
- 45 **P.C. Stangeby**, *The interpretation of plasma probes in fusion experiments*, dans *Plasma diagnostics, Vol. 2 Surface analysis and interactions*, O. Auciello et D.L. Flamm, Editors (1989) Academic Press Boston, p. 157-209.
- 46 **J.P. Gunn, C. Boucher, B.L. Stansfield et S. Savoie**, *Flush-mounted probes in the divertor plates of Tokamak de Varennes*. Rev. Sci. Instrum., 66(1) (1995) p. 154-159.
- 47 **I.I. Aksenov, V.A. Belous, V.G. Padalka et V.M. Khoroshikh**, *Transport of plasma streams in a curvilinear plasma-optics system*. Soviet J. Plasma Phys., 4(4) (1978) p. 425-428.
- 48 **D.B. Boercker, D.M. Sanders, J. Storer et S. Falabella**, *Modeling plasma flow in straight and curved solenoids*. J. Appl. Phys., 69(1) (1991) p. 115-120.
- 49 **S. Falabella et D.M. Sanders**, *Comparison of two filtered cathodic arc sources*. J. Vac. Sci. Technol. A, 10(2) (1992) p. 394-397.
- 50 **S. Anders, A. Anders et I. Brown**, *Effect of duct bias on transport of vacuum arc plasmas through curved magnetic filters*. J. Appl. Phys., 75(10) (1994) p. 4900-4905.
- 51 **A. Anders, S. Anders et I.G. Brown**, *Transport of vacuum arc plasmas through magnetic macroparticle filters*. Plasma Sources Sci. Technol., 4 (1995) p. 1-12.
- 52 **S. Anders, S. Raoux, K. Krishnan, R.A. Mac Gill et I.G. Brown**, *Plasma distribution of cathodic arc deposition systems*. J. Appl. Phys., 79(9) (1996) p. 6785-6790.
- 53 **B. Alterkop, E. Gidalevich, S. Goldsmith et R.L. Boxman**, *Vacuum arc plasma jet propagation in a toroidal duct*. J. Appl. Phys., 79(9) (1996) p. 6791-6802.
- 54 **C. Doughty, A.T. Findikoglu et T. Venkatesan**, *Steady state pulsed laser deposition target scanning for improved plume stability and reduced particle density*. Appl. Phys. Lett., 66(10) (1995) p. 1276-1278.
- 55 **R. Jordan, D. Cole et J.G. Lunney**, *Pulsed laser deposition of particulate-free thin films using a curved magnetic filter*. Appl. Surf. Sci., 109-110 (1997) p. 403-407.
- 56 **Y.Y. Tsui, D. Vick et R. Fedosejevs**, *Guiding and confinement of a laser produced plasma by a curved magnetic field*. Appl. Phys. Lett., 70(15) (1997) p. 1953-1955.
- 57 **C. de Julián Fernández, J.L. Vassent et D. Givord**, *Thin film deposition by magnetic field-assisted pulsed laser assembly*. Appl. Surf. Sci., 138-139 (1999) p. 150-154.
- 58 **S. Weißmantel, D. Rost et G. Reißer**, *Magnetic field assisted increase of growth rate and reduction of particulate incorporation in pulsed laser deposited boron nitride films*. Appl. Surf. Sci., 197-198 (2002) p. 464-498.

CHAPITRE 3 :

CARACTÉRISATION, EN CHAMP MAGNÉTIQUE NUL, DES PLASMAS DE DIVERS ÉLÉMENTS

| | | |
|--------------|---|-----------|
| I | CARACTÉRISATION D'UN PLASMA PAR SONDE DE LANGMUIR | 55 |
| I.1 | GAINÉ DE PLASMA | 55 |
| I.1.1 | CRÉATION DE LA GAINÉ AU VOISINAGE D'UNE PAROI | 55 |
| I.1.2 | ÉPAISSEUR DE GAINÉ | 56 |
| I.2 | CARACTÉRISATION D'UN PLASMA STATIQUE PAR SONDE DE LANGMUIR | 57 |
| I.3 | CARACTÉRISATION D'UN PLASMA EN EXPANSION PAR | |
| | UNE SONDE DE LANGMUIR EN MODE TEMPS DE VOL | 61 |
| I.4 | ÉLECTRONS SECONDAIRES | 62 |
| II | NOTRE ARRANGEMENT EXPÉRIMENTAL | 63 |
| III | TRAITEMENTS DES DONNÉES OBTENUES PAR SONDE DE LANGMUIR | 66 |
| III.1 | OBSERVATIONS QUALITATIVES | 66 |
| III.2 | ÉVALUATION DE LA TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE T_e | 69 |
| III.3 | ÉVALUATION DU NOMBRE DE PARTICULES PAR UNITÉ DE VOLUME | 73 |
| III.3.1 | DENSITÉ IONIQUE | 73 |
| III.3.2 | REMARQUE SUR LA DENSITÉ ÉLECTRONIQUE ET LE POTENTIEL PLASMA | 73 |
| III.4 | DES COURANTS EN FONCTION DU TEMPS | |
| | AUX DENSITÉS IONIQUES EN FONCTION DE L'ÉNERGIE | 74 |
| IV | ÉTUDES EXPÉRIMENTALES DES PLASMAS OBTENUS | 76 |
| IV.1 | PARAMÈTRES PHYSIQUES CALCULÉS DES PLASMAS | 76 |
| IV.2 | RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX | 77 |
| IV.2.1 | REMARQUES PRÉLIMINAIRES | 77 |
| IV.2.2 | DENSITÉ IONIQUE | 79 |
| IV.2.3 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 82 |
| IV.2.4 | STRUCTURE À TEMPS COURTS | 84 |
| IV.3 | ANALYSE ET DISCUSSION | 85 |
| IV.3.1 | TAUX D'ABLATION | 85 |
| IV.3.2 | EFFET DE LA DISTANCE CIBLE-SUBSTRAT | 88 |
| IV.3.3 | DE L'ÉNERGIE DES IONS À LA TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 89 |
| IV.3.4 | ÉNERGIE CINÉTIQUE DES IONS ET TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE : | |
| | D'UN ÉLÉMENT À L'AUTRE, ET EN FONCTION DE LA FLUENCE | 92 |
| IV.3.5 | STRUCTURES À TEMPS COURTS | 93 |
| IV.3.6 | TEMPÉRATURES ÉLECTRONIQUES | 93 |
| IV.3.6.1 | Une évaluation de la constante adiabatique γ | 93 |
| IV.3.6.2 | Lien entre $n_i(t)$ et $T_e(t)$ mesurés à la sonde de Langmuir | 94 |
| IV.3.7 | DISTRIBUTIONS ANGULAIRES | 95 |
| IV.3.7.1 | Paramètres et arrangements expérimentaux | 95 |
| IV.3.7.2 | Résultats et analyse | 96 |
| V | CONCLUSION | 98 |
| VI | RÉFÉRENCES | 98 |

Dans la première partie de ce chapitre, je décris le principe de fonctionnement d'une sonde de Langmuir, un outil classique de caractérisation des plasmas, et le montage expérimental de mesure de temps de vol que j'ai développé pour cette étude. La seconde partie de ce chapitre est consacrée à la caractérisation de plasmas de divers éléments.

I CARACTÉRISATION D'UN PLASMA PAR SONDE DE LANGMUIR

I.1 Gaine de plasma

I.1.1 Création de la gaine au voisinage d'une paroi

Considérons un plasma électriquement neutre à l'intérieur d'une enceinte isolée (*plasma statique*). La densité électronique n_e et la densité ionique n_i sont toutes les deux égales à la densité du plasma n_0 ($n_i = n_e = n_0$). En raison des mouvements thermiques existant dans le milieu, des charges négatives et positives arrivent sur les parois. Initialement, du fait de la grande différence de mobilité entre électrons et ions, le nombre d'électrons arrivant par unité de temps sur les parois est supérieur au nombre d'ions. Les parois de l'enceinte se chargent donc à un potentiel négatif, V_f , par rapport au potentiel du plasma, V_p . Du fait de l'existence de ce potentiel, une zone, dénommée « gaine », se forme au voisinage des parois (Fig. 1), de laquelle les électrons, très mobiles, sont expulsés et au sein de laquelle les ions sont accélérés vers les parois [1] [2] [3] [4] [5]. Ce double mécanisme assure que, en régime stationnaire, le même nombre d'électrons et d'ions arrivent sur les parois par unité de temps. Le courant résultant est nul.

Pour évaluer la différence de potentiel $V_p - V_f$, nous exprimons qu'en régime stationnaire, les flux d'ions et d'électrons sont égaux et valent :

$$j_i = \frac{I}{4} n_i e v_i = j_e = \frac{I}{4} n_e e v_e. \quad (1)$$

Dans cette relation, le coefficient $1/4$ résulte du fait que les directions de déplacement des charges sont aléatoires. Au sein de la gaine, la densité électronique est donnée par :

$$n_e = n_{e0} \exp\left(\frac{-e(V_p - V_f)}{k_B T_e}\right), \quad (2)$$

où n_{e0} est la densité au cœur du plasma et l'on suppose que $n_i = n_{e0}$ du fait de la faible mobilité des ions. La différence de potentiel entre le plasma et les parois vaut :

$$V = V_f - V_p = -\frac{k_B T_e}{e} \ln\left(\frac{n_i}{n_e}\right). \quad (3)$$

Dans le cas particulier d'un plasma statique dans lequel les ions et les électrons sont à la même température, cette expression devient :

$$V = V_f - V_p = -\frac{k_B T_e}{2e} \ln\left(\frac{m_i}{m_e}\right). \quad (4)$$

I.1.2 Épaisseur de gaine

Partons de la paroi de l'enceinte (surface planeaire parfaitement absorbante) positionnée en $x = 0$ (Fig. 1), au potentiel négatif V_f . À une certaine distance de la paroi, on retrouve le plasma neutre au potentiel V_p .

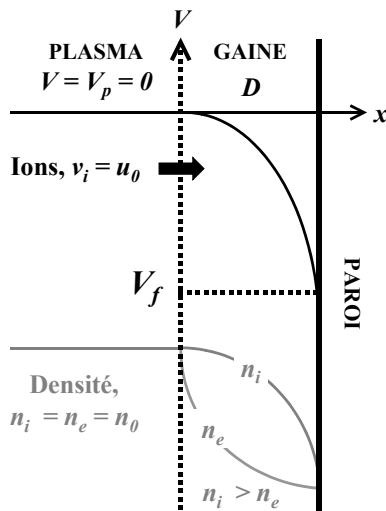


Fig. 1 : Système modèle de la gaine de plasma. Le potentiel V de la gaine est tracé (en noir) en fonction de la distance x à la paroi. Les ions entrent dans la gaine par la gauche à une vitesse u_0 . L'évolution des densités ionique n_i et électronique n_e est représentée (en gris) en fonction de la distance x à la paroi ($n_i > n_e$).

Soit u_0 , la vitesse des ions à l'entrée de la gaine (u_0 résulte, par exemple, d'une expansion initiale). Pour évaluer l'épaisseur de gaine D , on suppose que la température des ions est négligeable. En supposant qu'aucune collision ne se produit et en tenant compte de la conservation de l'énergie, on montre que la densité des ions dans la gaine est donnée par :

$$n_i(x) = n_0 \left(1 - \frac{2eV}{m_i u_0^2}\right)^{-1/2}. \quad (5)$$

Du fait que les mouvements des électrons sont déterminés par l'agitation thermique, la densité électronique obéit de son côté à la relation de Boltzmann (2) (p. 55). Enfin, les densités ionique et électronique sont reliées par l'équation de Poisson.

À partir de ces différentes expressions, on peut, en principe, déterminer le potentiel de gaine V , n_e et n_i . Celles-ci ne peuvent cependant être résolues que numériquement [6]. Dans l'approximation analytique proposée par Child¹ [7], on délimite une zone dans laquelle le potentiel est nul, et une zone, d'épaisseur D , dans laquelle il a une solution analytique approchée. L'épaisseur de la gaine, région où la densité électronique est négligeable, est donnée par (6) :

$$D = \frac{\sqrt{2}}{3} \lambda_D \left(\frac{2eV}{k_B T_e} \right)^{3/4}, \quad (6)$$

où λ_D est la longueur de Debye ($\lambda_D = \sqrt{\varepsilon_0 k_B T_e / n_e e^2}$).

I.2 Caractérisation d'un plasma statique par sonde de Langmuir

La zone d'exclusion de charges qu'est la gaine peut être fixée artificiellement en appliquant un potentiel V_b sur une surface conductrice immergée dans un plasma. Le champ électrique qui dérive de ce potentiel permet à un type d'espèces, qui entre dans la gaine, d'atteindre la surface conductrice, inversement, il repousse les espèces de charge opposée. Une telle surface conductrice constitue une « sonde de Langmuir ».

Considérons le cas simple d'une sonde planaire, de surface S , et supposons une particule de charge $\pm e$ et de masse m , qui entre dans la gaine avec une composante de la vitesse v_{\perp} , selon la normale à la sonde. La condition pour que cette particule atteigne la sonde est donnée par :

$$\frac{1}{2} m v_{\perp}^2 > |e(V_p - V_b)|. \quad (7)$$

Considérons d'abord le cas des électrons, la relation (7) est satisfaite dès que $V_p - V_b$ est négatif. Considérant que les mouvements des électrons, entièrement déterminés par l'agitation

¹ L'expression donnant l'évolution du potentiel de gaine en fonction de x , et celle donnant l'épaisseur de gaine (6), constituent la « loi de Child ».

thermique, sont aléatoires, le courant électronique, dit de saturation, est déterminé par une expression similaire à l'expression (1) [2] :

$$I_{e,sat} = \frac{1}{4} n_e \bar{v}_e e S, \quad (8)$$

où \bar{v}_e est la vitesse quadratique moyenne des électrons et S la surface de la sonde. Supposant une distribution de vitesses maxwellienne, celle-ci vaut :

$$\bar{v}_e = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}}, \quad (9)$$

où T_e est la température électronique et m_e la masse de l'électron.

Pour des valeurs de $V_p - V_b$ positives mais pas trop grandes, des électrons de vitesses suffisantes peuvent atteindre la sonde. La probabilité correspondante est déterminée par la statistique de Boltzmann, soit :

$$I_e = I_{e,sat} \exp\left[\frac{e(V_p - V_b)}{k_B T_e}\right]. \quad (10)$$

La variation du courant électronique en fonction du potentiel V_b appliqué à la sonde, calculée en supposant $I_{e,sat} = 1 \text{ A}$ et $T_e = 10^4 \text{ K}$ est tracée sur la Fig. 2 (a) (p. 60).

Considérons maintenant le courant ionique, dans un plasma statique, à l'équilibre thermodynamique. Des relations similaires aux relations ci-dessus s'appliquent pour le courant ionique [8] :

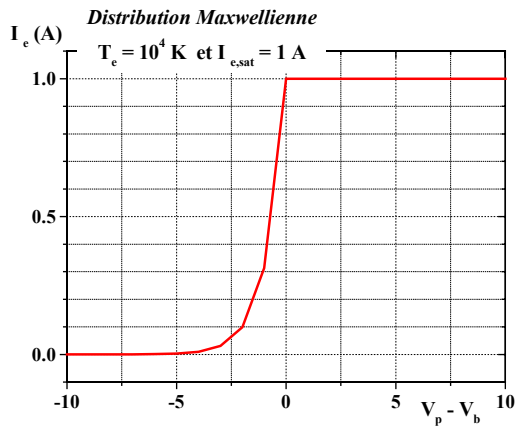
$$I_{i,sat} = \frac{1}{4} n_i \bar{v}_i e S \quad (11)$$

et :

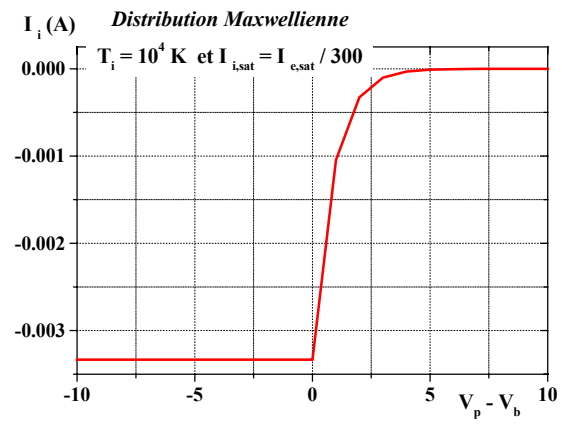
$$I_i = I_{i,sat} \exp\left[\frac{-e(V_p - V_b)}{k_B T_i}\right]. \quad (12)$$

Dans ces relations, I_i est le courant ionique, n_i la densité ionique, $I_{i,sat}$ le courant ionique de saturation, T_i la température des ions. Du fait de la masse bien supérieure des ions, le courant ionique est très inférieur au courant électronique. Supposons des ions fer, $\sqrt{m_i/m_e} \approx 300$, on déduit des relations (8) et (11), que $\bar{v}_i \approx \bar{v}_e/300$, et le courant ionique est réduit dans les

mêmes proportions. La variation schématique du courant ionique en fonction de la tension appliquée est tracée sur la Fig. 2 (b) (p. 60). Supposant $T_i = T_e$ et $n_i = n_e$ (plasma neutre), cette variation se compare directement à celle du courant électronique. Il résulte de ces arguments que le courant total mesuré est pratiquement identique au courant électronique (Fig. 2 (c) p. 60). Dans la région de collection du courant électronique, le logarithme du courant électronique, $\ln(I_e)$ (pratiquement identique à $\ln(I_{total})$), varie linéairement avec la tension V_b (Fig. 2 (d) p. 60). De la pente correspondante, $e/k_B T_e$, on peut déduire la température électronique. Le changement de pente observé dans la variation de $\ln(I_{total})$ en fonction de V_b correspond au moment où la tension appliquée à la sonde, V_b , atteint le potentiel plasma, V_p [9].



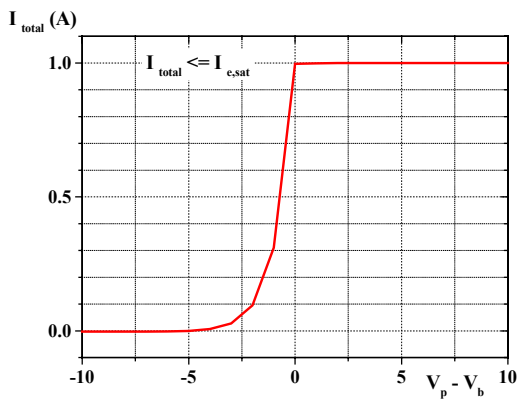
(a)



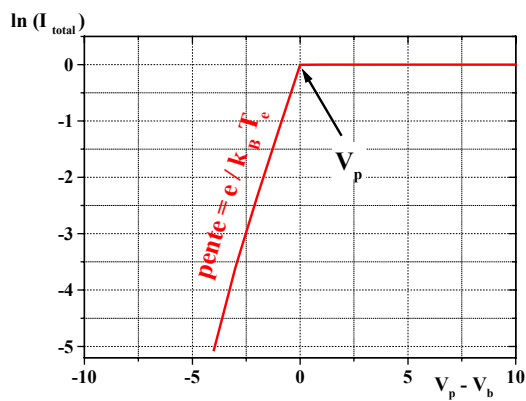
(b)

Courant électronique pour une distribution Maxwellienne d'électrons de température moyenne 10^4 K .

Courant ionique pour une distribution Maxwellienne d'ions. $T_i = T_e$ et $n_i = n_e$.
 $I_{i,sat} \approx I_{e,sat} / 300$.



(c)



(d)

Courant total mesuré pratiquement identique au courant électronique.

Logarithme du courant total variant linéairement avec V_b dans la région de collection des électrons.

Fig. 2 : Simulation du comportement des courants collectés par une sonde de Langmuir dans un plasma statique où les mouvements des électrons et des ions sont entièrement déterminés par l'agitation thermique. Le courant électronique est positif, le courant ionique négatif. Notez la différence d'échelle entre courant électronique et courant ionique.

I.3 Caractérisation d'un plasma en expansion par une sonde de Langmuir en mode temps de vol

Dans le cas qui nous intéresse d'un plasma en expansion, la sonde de Langmuir peut aussi être utilisée en mode temps de vol pour caractériser les propriétés du plasma [10] [11] [12]. Nous savons que la vitesse des électrons, liée à l'agitation thermique est, à tout instant, supérieure de plus d'un ordre de grandeur à leur vitesse de dérive. Les expressions données ci-dessus pour un plasma statique s'appliquent directement, en remplaçant la densité électronique constante, n_e , par la densité dépendante du temps, $n_e(t)$ (Fig. 3 (a)).

À l'opposé du cas des électrons, la vitesse d'expansion des ions est très supérieure à leur vitesse résultant de l'agitation thermique. En supposant que l'expansion se produit exactement selon la direction perpendiculaire au plan de la sonde, le courant ionique de saturation, à l'instant t , est :

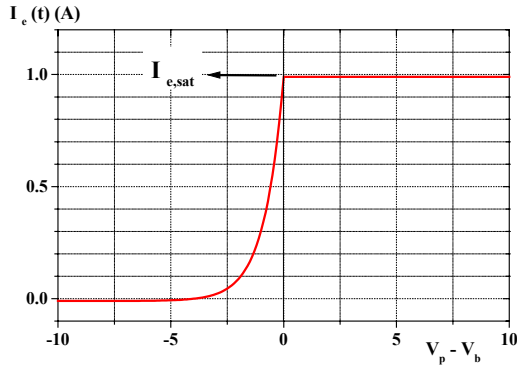
$$I_{i,sat}(t) = en_i(t)v_i(t)S, \quad (13)$$

où $n_i(t)$ et $v_i(t)$ ($\equiv v_{TOF}$)² sont les densités et vitesses de déplacement des ions à l'instant t . Les vitesses caractéristiques des ions sont de l'ordre de 10^4 m s^{-1} (voir Chapitre 2). Le rapport prédit du courant électronique de saturation au courant ionique de saturation est d'environ 7, au lieu de la valeur 300 obtenue pour un plasma statique.

L'énergie cinétique d'un ion de vitesse $v_i(t)$ est $1/2 \times m_i v_i^2(t)$. À cette énergie, nous associons le potentiel $V_i(t)$ tel que : $eV_i(t) = 1/2 m_i v_i^2(t)$. Une discontinuité se produit dans la variation $I_i^{(t)}(V_b)$ du courant ionique pour $V_b = V_i(t)$; pour des valeurs de tensions supérieures les ions sont tous repoussés, pour des valeurs inférieures ils sont intégralement collectés (Fig. 3 (b)). De $v_i(t) \approx 10^4 \text{ m s}^{-1}$, on déduit $V_i(t) \approx 20 \text{ V}$, valeur très supérieure à celle des tensions requises pour agir sur les électrons. Au voisinage du potentiel plasma, le courant ionique se manifeste donc comme une contribution constante qui se soustrait au courant électronique. Réciproquement, $I_e(t)$ peut être évalué par soustraction du courant ionique à saturation (mesuré en potentiel négatif supérieur à quelques Volts) au courant total

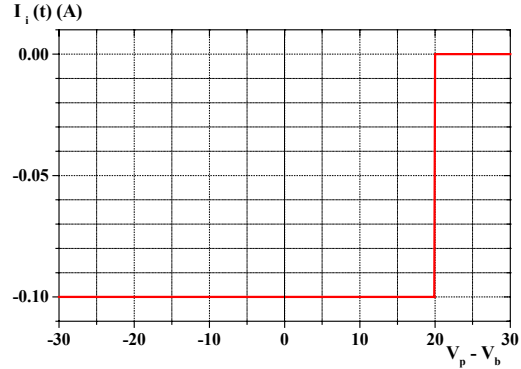
² TOF \equiv « time of flight » : temps de vol.

expérimental (Fig. 3 (c)). La procédure alors utilisée pour déduire T_e est décrite plus loin (Paragraphe III.2 p. 69).



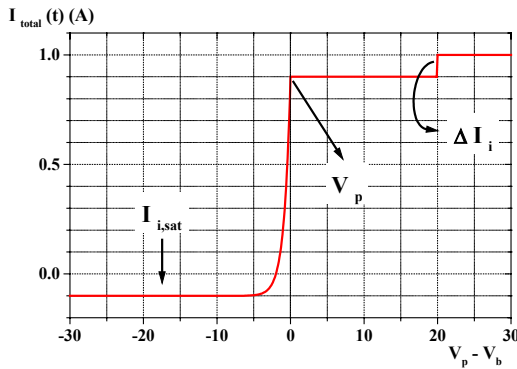
(a)

Courant électronique simulé.



(b)

Courant ionique simulé.



(c)

Courant total simulé.

Fig. 3 : Simulation du courant collecté pour un temps de vol donné t , par une sonde de Langmuir dans un plasma en expansion. (a) $I_e(t)$, (b) $I_i(t)$, (c) $I_{total}(t)$.

I.4 Électrons secondaires

Le bombardement (atomes ou ions) d'une surface métallique peut engendrer une émission d'électrons secondaires par cette dernière [42] [43]. Il est donc légitime de s'interroger sur l'influence de tels électrons sur le signal détecté par une sonde de Langmuir. Deux mécanismes essentiels sont source d'une émission d'électrons secondaires [44]. Le premier est l'émission cinétique, le second l'émission potentielle. L'émission cinétique se produit au dessus d'un seuil énergétique des espèces incidentes (atomes ou ions) équivalent à au moins 600 eV [44]. C'est un phénomène négligeable dans notre cas. L'émission potentielle

se produit dès lors que l'énergie potentielle d'un ion arrivant sur une surface dépasse 2 fois le travail de sortie des atomes bombardés. Dans le cas qui nous concerne, les ions et les éléments de la surface sont de même nature. Les valeurs des potentiels d'ionisation et des travaux de sortie sont reportés dans le Tab. 2 (p. 76). La condition nécessaire à l'émission potentielle n'est respectée dans aucun cas. En conclusion, lorsque le taux d'ionisation du plasma est significatif, les arguments proposés par Brongersma *et al.* [45] ne peuvent s'appliquer, et l'émission d'électrons secondaires ne peut constituer qu'une faible perturbation du signal collecté par la sonde de Langmuir.

II NOTRE ARRANGEMENT EXPÉRIMENTAL

Nous avons utilisé un dispositif de sonde de Langmuir planaire pour mesurer en mode temps de vol les signaux ioniques et électroniques de différents plasmas : *Fe, Pt, Al, Cu, Mo*. Pour toutes les mesures, nous avons utilisé un laser Nd:YAG pulsé, fonctionnant à 10 Hz, source d'un rayonnement à la longueur d'onde $\lambda = 532 \text{ nm}$, et de durée d'impulsions $\tau = 6 \text{ ns}$. Les cibles des matériaux étudiés étaient placées dans une enceinte pompée à un vide de 10^{-6} mbar . Les cibles étaient des plaques circulaires d'épaisseur typique 5 mm et de 35 mm de diamètre. Elles ont été fixées mécaniquement sur le porte-cible à l'aide du montage décrit au Chapitre 1 Paragraphe III.2 (2) (p. 15) (*Fe, Pt*) ou simplement collées ((1) p. 15) (*Al, Cu* et *Mo*). Le faisceau incident faisait un angle de 25° avec la normale à la cible. Pour les mesures sur *Fe* et *Pt*, le laser générait des impulsions de 240 mJ. Le spot incident sur la cible avait une forme approximativement elliptique de 0.275 cm^2 , la densité d'énergie correspondante était de 0.9 J cm^{-2} . Pour les mesures sur *Al, Cu* et *Mo*, le laser générait des impulsions de 84 mJ, 180 mJ ou 360 mJ, selon les conditions expérimentales utilisées. Le spot incident sur la cible avait une forme approximativement elliptique de 0.0707 cm^2 , les densités d'énergie correspondantes étaient de 1 J cm^{-2} , 2.5 J cm^{-2} et 5 J cm^{-2} . Ces conditions expérimentales (densité d'énergie F , irradiance I , diamètre du spot sur la cible ϕ_s , et surface du spot sur la cible) sont rassemblées dans le Tab. 1.

| | | | | |
|----------------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| Énergie par impulsion (mJ) | 240 | 84 | 180 | 360 |
| F ($J\ cm^{-2}$) | 0.9 | 1 | 2.5 | 5 |
| I ($W\ cm^{-2}$) | 1.5×10^8 | 1.7×10^8 | 4.2×10^8 | 8.3×10^8 |
| ϕ_s (mm) | 5×7 | ≈ 3 | ≈ 3 | ≈ 3 |
| Surface spot (cm^2) | 0.275 | 0.0707 | 0.0707 | 0.0707 |

Tab. 1 : Paramètres expérimentaux liés au laser mis en jeu lors de l'ablation des différents métaux étudiés. La durée d'impulsion, τ , est de 6 ns, la fréquence de répétition du laser, F_{rep} , de 10 Hz. Les dimensions du spot ont été déterminées, soit avec un papier thermique (relativement précis), soit en mesurant directement le diamètre du cratère d'ablation sur la cible après quelques minutes de dépôt.

La sonde est une plaque de cuivre carrée de $0.3\ mm$ d'épaisseur et de $4\ mm$ de côté environ (selon les systèmes, $1.80 \times 10^{-5}\ m^2 \leq S \leq 1.95 \times 10^{-5}\ m^2$). Le rapport d'échelle des dimensions est suffisamment grand pour que les effets de bord soient, à priori, négligeables. En tout état de cause, la sonde est isolée sur les côtés. Elle est fixée sur un support isolant. Seule la surface en regard du spot laser est conductrice, elle est perpendiculaire au flux du plasma, à une distance de $10\ cm$ de la cible pour les plasmas de fer et de platine ; à une distance cible-sonde de $7\ cm$ ou $15\ cm$ pour les plasmas d'aluminium, cuivre et molybdène. Cet arrangement expérimental dans son ensemble est schématisé sur la Fig. 4.

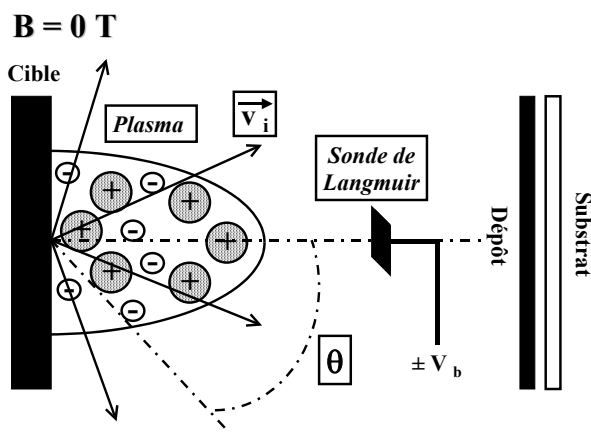


Fig. 4 : Arrangement expérimental utilisé pour la caractérisation des plasmas par sonde de Langmuir. Les détails expérimentaux de la chambre de dépôt laser pulsé sont décrits dans le Chapitre 1.

L'amenée de courant sur la plaque de cuivre est un fil de cuivre gainé d'un matériau isolant de diamètre 0.3 à $0.5\ mm$, et soudée à l'étain sur la face arrière de la sonde. Ce fil est relié, par l'intermédiaire d'un cavalier en tantale isolé avec de la fibre de verre, aux fils

d'alimentation électrique utilisés avec le porte-substrat chauffant (cf Chapitre I Paragraphe III.3 p. 16). Un passage électrique compatible UHV permet d'amener la tension dans la chambre de dépôt. Nous avons utilisé deux types de générateur de tension : une alimentation stabilisée à courant continu Sorensen ($80\text{ V} - 13\text{ A}$), pilotée en tension, avec laquelle la tension appliquée à la sonde a pu être variée de $+80\text{ V}$ à -80 V pour l'étude des plasmas *Fe* et *Pt* ; et un générateur de tension développé par l'ISTG permettant de varier la polarisation de la sonde de $+30\text{ V}$ à -30 V pour étudier les caractéristiques des plasmas *Al*, *Cu* et *Mo*.

Pendant une acquisition, la cible et la chambre de dépôt sont à la masse. Le courant collecté, déterminé à partir de la tension développée à travers une résistance de charge de $50\ \Omega$, est mesuré par un oscilloscope numérique en temps réel Tektronix TDS 3054, synchronisé avec les impulsions du laser (*signal TTL fourni par le laser permettant de repérer le début d'une impulsion et ainsi de déclencher la mesure de temps de vol à partir du moment où le faisceau frappe la cible. En pratique, ce signal TTL, d'une durée de $6\ \mu\text{s}$, est synchronisé avec le déclenchement des cellules de Pockels. Le délai est inférieur à $1\ \text{ns}$. L'impulsion laser suit ce signal TTL après $350\ \text{ns}$; dans nos courbes de temps de vol, $t = 0\ \mu\text{s}$ correspond donc au moment où le faisceau laser frappe la cible*). Le potentiel est appliqué à la sonde à travers une résistance de $10\ \text{k}\Omega$. Il est maintenu en utilisant un condensateur de $220\ \text{nF}$ (Fig. 5). Aux courants les plus forts mesurés, la charge amenée par la sonde représente le $1/3$ de la charge du condensateur. La tension vue par la sonde est donc réduite dans des proportions similaires.

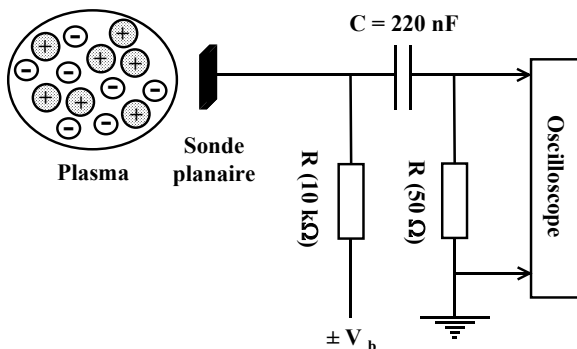


Fig. 5 : Montage électrique permettant de recueillir le signal collecté par la sonde de Langmuir.

Chaque mesure a été effectuée avec l'oscilloscope en mode d'acquisition « moyennage » [13] afin de réduire le bruit aléatoire du signal à afficher. À chaque

acquisition, les données sont acquises en mode « normal »³. La mesure d'un point dure 10 ns , l'acquisition est constituée de $10\ 000\ points$. la durée totale d'une acquisition, M , est donc de $100\ \mu s$ ⁴. Chacune de ces acquisitions est répétée 512 fois pour les plasmas de Fe et Pt , 128 fois pour les plasmas de Al , Cu et Mo . Une mesure est la moyenne de ces 512 ou 128 acquisitions. Avant chaque série de mesures, quelques acquisitions ont été effectuées afin de nettoyer cible et sonde, ainsi que de vérifier la reproductibilité du signal de temps de vol enregistré (fluctuations en amplitude d'environ $5\ \%$).

III TRAITEMENTS DES DONNÉES OBTENUES PAR SONDE DE LANGMUIR

III.1 Observations qualitatives

Le signal $I(V_b)$ de la sonde de Langmuir, obtenu avec Fe , à un temps de vol de $5\ \mu s$, est présenté sur la Fig. 6 (p. 68). Il est typique des signaux que nous avons obtenus par sonde de Langmuir. Un faible courant constant et négatif est obtenu dès que la tension négative est d'amplitude supérieure à quelques Volts. Un tel comportement est qualitativement en accord avec ce qui est attendu et le signal constant peut être considéré comme représentatif du courant ionique à saturation $I_{i,sat}$. Dans ce cas particulier, il vaut $20\ mA$.

Lorsque la tension appliquée approche $0\ V$, puis change de signe, le courant mesuré diminue très rapidement puis change de signe lui aussi. On passe du régime de collection des ions au régime où les électrons et les ions sont collectés ensemble (voir Paragraphe I p. 55). Le comportement alors observé diffère profondément de celui que nous avons prévu. Le courant mesuré augmente continûment, de façon approximativement linéaire, avec la tension. La variation totale de signal mesurée est bien supérieure à la valeur du courant ionique $I_{i,sat}$. Elle ne peut être attribuée à une diminution progressive du courant ionique. Cette variation résulte donc d'une augmentation régulière du signal électronique. Alors que l'ordre de grandeur du courant électronique de saturation attendu est $I_{e,sat} \approx 7\ I_{i,sat}$

³ Le mode « normal » permet d'obtenir $10\ 000$ points et de les afficher en fonction du paramètre seconde/division ($10\ \mu s/div$ et 10 divisions dans notre cas). Le taux d'échantillonnage est de $100\ Méch/s$. Donc le mode « normal » acquiert un point d'échantillonnage unique pour chaque intervalle.

⁴ La durée d'acquisition, M , a été fixée à $40\ \mu s$ lors des séries de mesures ayant permis la détermination de la température électronique des plasmas Al , Cu et Mo . Un point est alors acquis toutes les $4\ ns$ ($4\ \mu s/div$).

(voir Paragraphe I.2 p. 57), le courant mesuré sous $+ 80 V$ est 7 fois supérieur à cette valeur (voir Fig. 6 -p. 68- pour $t_{TOF} = 5 \mu s$, $I_{e,+80V} = 0.95 A$). Nous en déduisons que le volume de collection des électrons n'est pas constant comme on le suppose dans l'utilisation habituelle d'une sonde de Langmuir, mais qu'il augmente fortement lorsqu'une tension positive est appliquée.

Cette interprétation est confortée par le comportement du signal $I(V_b)$ à un temps de vol de $25 \mu s$ (Fig. 7 p. 68). Aux tensions inférieures à $+ 30 V$, le signal est qualitativement similaire au signal obtenu au bout de $5 \mu s$. Cependant, le signal de la sonde sature de façon assez brutale pour des tensions positives supérieures à $+ 30 V$ (Fig. 7 p. 68). Le courant électronique alors déduit vaut $39 mA$ ($V_b = + 30 V$). Notre interprétation de ce phénomène est que l'ensemble des électrons du plasma sont maintenant collectés et le courant ne peut plus augmenter. Cette interprétation sera confortée par l'analyse des mesures effectuées sous champ magnétique (voir Chapitre 4).

Une augmentation du courant électronique avec la polarisation de la sonde a déjà été reportée dans un plasma généré par laser de cuivre [13] et attribuée à une augmentation de l'épaisseur de gaine. L'explication proposée alors est que la non-saturation de I_e est due à l'augmentation de l'aire effective de collection de la sonde. Une augmentation de l'épaisseur de gaine avec V_b est prévue par la loi de Child (relation (6) p. 57) [14] [15]. Cependant, l'épaisseur de gaine, calculée dans le cas présent, à partir de la relation (6), augmente de 45 à $350 \mu m$ lorsque la tension augmente jusqu'à $+ 80 V$. La sonde ayant des dimensions millimétriques, sa surface de collection n'est pratiquement pas altérée. Nous attribuons plutôt l'augmentation de collection des électrons au fait que l'écrantage, au-delà de l'épaisseur de gaine, du potentiel appliqué à la sonde n'est pas total. Une tension de l'ordre de $+ 1 V$ est suffisante pour attirer les électrons, elle ne représente qu'une faible fraction de la tension, jusqu'à $+ 80 V$, appliquée à la sonde.

Toftmann *et al.* ont récemment utilisé une approche similaire à celle que nous venons de décrire pour analyser des plasmas générés par laser d'argent [16] [17]. Leurs publications ne mentionnent pas l'effet d'augmentation du courant électronique. L'analyse détaillée de leurs résultats indique que ce phénomène est présent, mais moins marqué que dans nos propres mesures. La différence est peut-être associée au fait que nous avons utilisé des sondes de surface importante qui perturbent plus fortement le plasma.

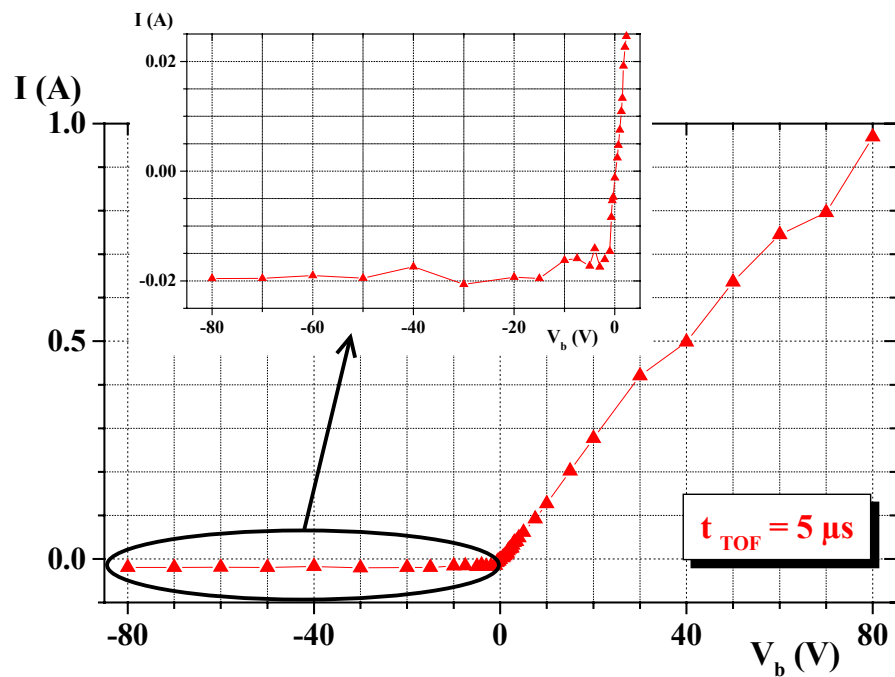


Fig. 6 : Caractéristiques $I-V_b$ du plasma de fer pour un temps de vol de $5 \mu s$. En insert, un zoom de la région de collection des ions.

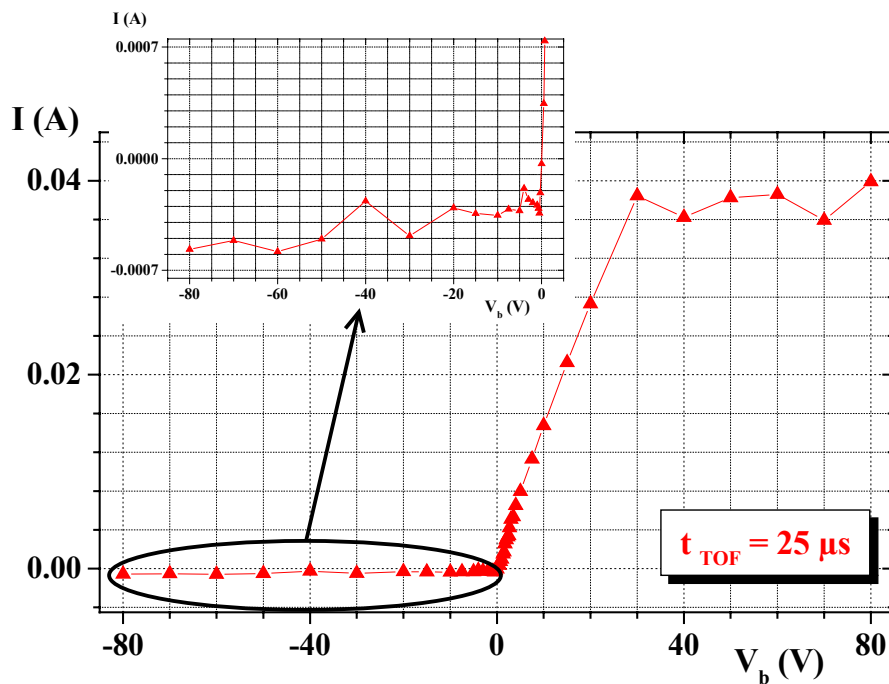
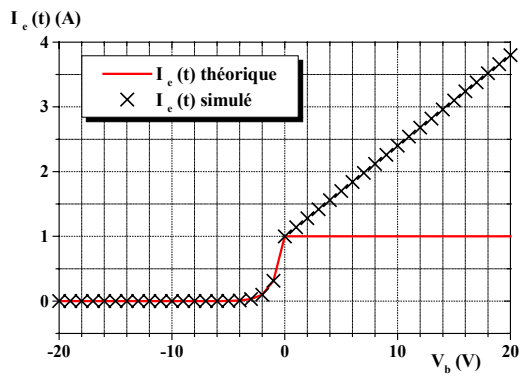


Fig. 7 : Caractéristiques $I-V_b$ du plasma de fer pour un temps de vol de $25 \mu s$. En insert, un zoom de la région de collection des ions. Notez pour $V_b > +30 V$, la saturation du signal collecté par la sonde.

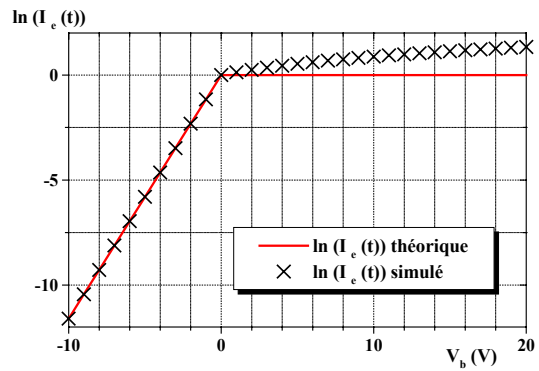
III.2 Évaluation de la température électronique T_e

La forte variation de courant électronique pour des tensions positives appliquées à la sonde, phénomène qui n'est pas prévu par les modèles simples de fonctionnement d'une sonde de Langmuir, amène naturellement à s'interroger sur la possibilité réelle d'extraire la température électronique selon la procédure décrite au Paragraphe I.2 (p. 57). La réponse suivante peut être proposée à cette interrogation : la valeur de T_e est extraite de la variation du signal électronique pour de faibles tensions négatives par rapport au potentiel plasma. Dès que $V_p - V_b$ est négatif, les électrons sont repoussés de la sonde, les arguments proposés ci-dessus n'ont plus lieu d'être et la collection ne doit pas être affectée.

Pour illustrer qu'il en est bien ainsi, nous supposons qu'un signal $I_{corr} = \alpha V_b$ se superpose au courant électronique théorique. $\alpha = 14$ a été choisi afin que, pour une tension appliquée de $+80V$, le signal mesuré soit *70 fois* supérieur au courant $I_{i,sat}$, en accord avec l'expérience. Le courant total supposé $I_{e,simul}$ est comparé sur la Fig. 8 (a) au courant I_e théorique et les logarithmes des courants sont comparés sur la Fig. 8 (b). Les valeurs des pentes $d(\ln I_e)/dV_b$ ne sont pas affectées aux faibles valeurs négatives de la tension appliquée (Fig. 8 (c)).



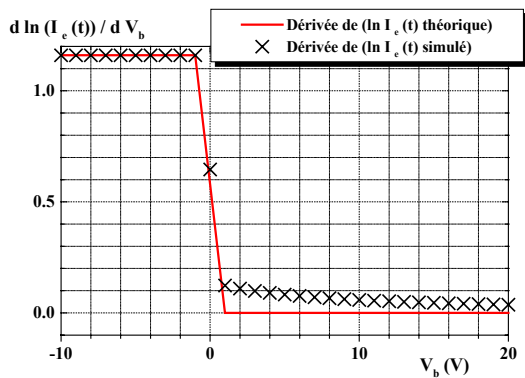
(a)



(b)

Caractéristique $I_e(V_b)$ à un temps donné.

Logarithme de $I_e(V_b)$ à un temps donné.



(c)

Dérivée selon V_b de $\ln(I_e)$ à un temps donné.

Fig. 8 : Influence de la non-saturation du courant électronique sur la détermination de la température électronique. Comparaison de courants électroniques saturé et en continue augmentation avec la polarisation de la sonde. (a) $I_e(V_b)$, (b) $\ln(I_e(V_b))$, (c) $d\ln(I_e)/dV_b$.

Nous avons considéré à cette occasion une autre source possible d'erreur dans la détermination de T_e , provenant de l'incertitude dans la détermination de $I_{i,sat}$. Les simulations, présentées sur la Fig. 9 (a), illustrent le fait que la soustraction d'un courant $I_{i,sat}$ légèrement supérieur au courant réel n'affecte pas la mesure de T_e , alors que T_e est sous-estimé lorsque le courant $I_{i,sat}$ supposé est inférieur à la valeur réelle. D'un point de vue expérimental, nous avons systématiquement exploré le domaine des valeurs possibles de $I_{i,sat}$ et T_e a été déduit de la pente $d(\ln I_e)/dV_b$, au moment où celle-ci prend la forme caractéristique associée à une sur-estimation de $I_{i,sat}$ (Fig. 9 (b)).

La procédure est illustrée sur la Fig. 11 pour Pt à un temps de vol de $10 \mu s$ (caractéristique $I-V_b$ tracée sur la Fig. 10).

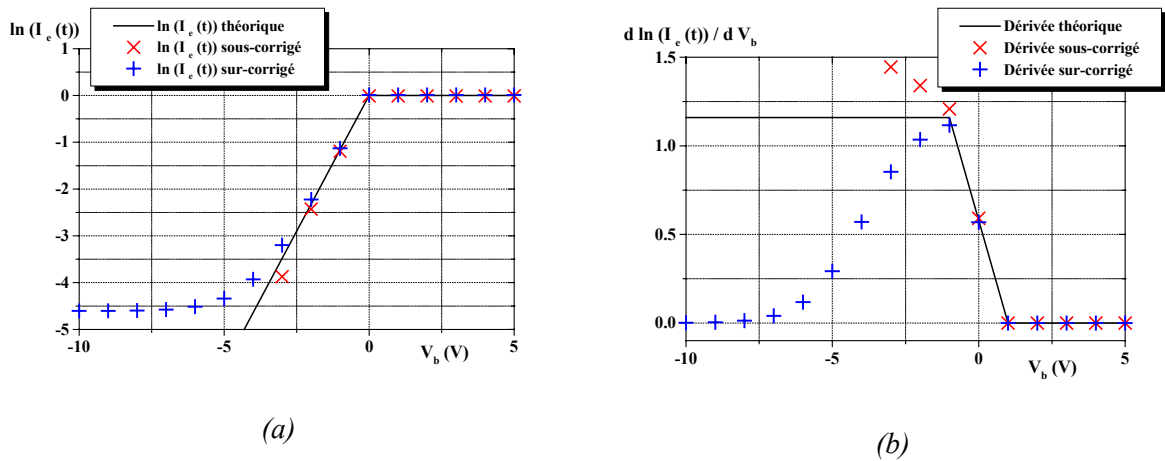


Fig. 9 : Évaluation de l'erreur liée à la détermination expérimentale de $I_{i,sat}$ sur la température électronique. Simulations (a) des logarithmes népériens des courants électroniques et (b) des dérivées qui leur sont associées. Remarquons l'influence d'un courant ionique de saturation sous-estimé sur la dérivée de $\ln(I_e)$.

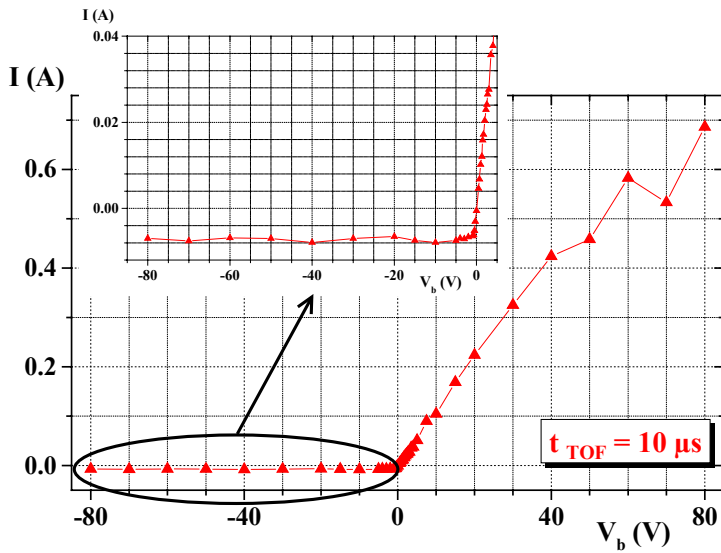


Fig. 10 : Caractéristiques $I-V_b$ du plasma de platine pour un temps de vol de $10 \mu s$. En insert, un zoom de la région de collection des ions.

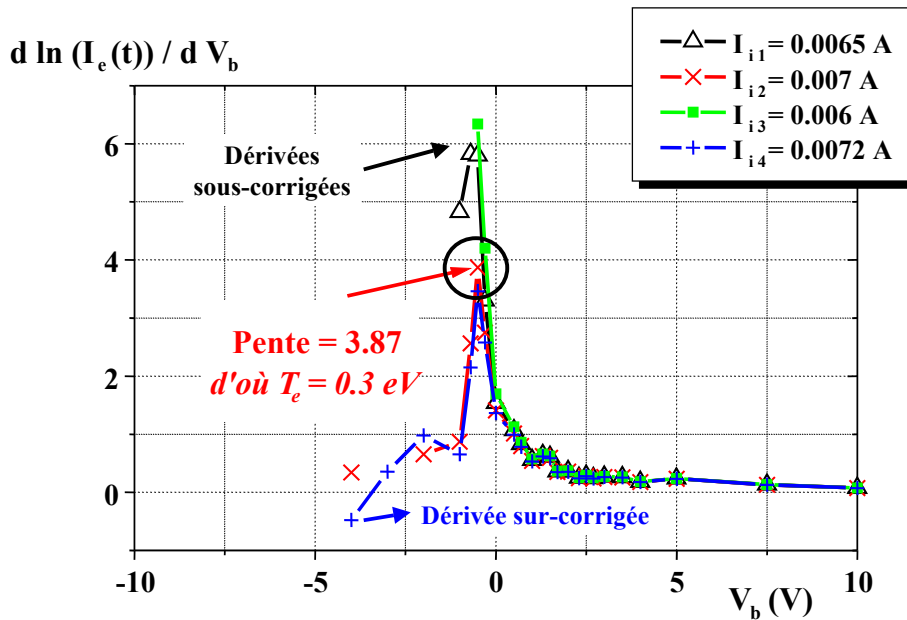


Fig. 11 : Dérivées associées au logarithme de I_e expérimental (Fig. 10), une fois le courant ionique soustrait. Remarquons la divergence de la dérivée de I_e pour I_i sous-estimé. En l'occurrence $I_{i,sat} = I_{i2} = 0.007 A$. Ce qui conduit à $T_e = 0.3 eV$ pour Pt à une temps de vol de $10 \mu s$. La courbe choisie pour la mesure de T_e est entourée d'un cercle.

III.3 Évaluation du nombre de particules par unité de volume

III.3.1 Densité ionique

Une polarisation de la sonde de quelques volts suffit pour collecter tous les ions du plasmas (Fig. 6 et Fig. 7 p. 68, et Fig. 14 (c) p. 78). $I_{i,sat}$ est donc facilement accessible d'un point de vue expérimental. Nous avons vu au Paragraphe I.3 (p. 61) que la relation (13), permettait de déterminer la densité ionique, $n_i(t)$, en fonction de $I_{i,sat}(t)$ et de $1/v_i(t)$. $I_{i,sat}$ a été déterminé, pour chaque temps de vol, en faisant la moyenne des valeurs expérimentales sur la gamme de potentiels appliqués à la sonde pour laquelle le courant est constant. C'est un moyen de s'affranchir des fluctuations du signal. Cette procédure est illustrée, pour un plasma de fer à $t = 20 \mu s$, en insert sur la Fig. 12. La densité ionique en fonction du temps, $n_i(t)$, ainsi obtenue est également représentée sur la Fig. 12. Pour les mesures sur *Al*, *Cu* et *Mo* réalisées à plus hautes densités d'énergie, nous avons simplement assimilé le courant ionique à saturation au courant mesuré sous un potentiel de $-25 V$ ou $-30 V$.

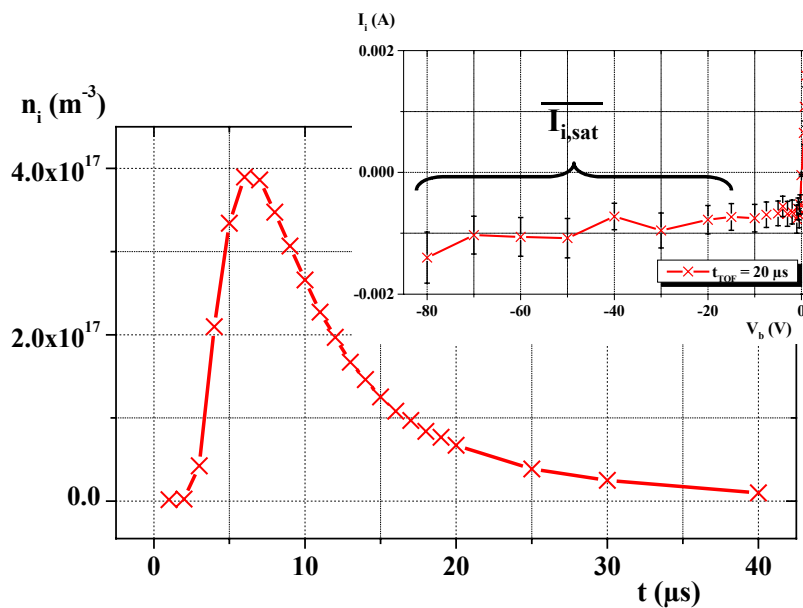


Fig. 12 : Nombre d'ions par m^3 en fonction du temps, d'un plasma de fer. $I_{i,sat}$ est déterminé, pour chaque temps de vol, en moyennant sur la partie saturée de la courbe (en insert).

III.3.2 Remarque sur la densité électronique et le potentiel plasma

En principe, $I_{e,sat}$ se détermine à partir d'une courbe $I-V_b$ déduite, pour chaque temps de vol, du courant total collecté par la sonde (en ayant bien entendu soustrait la contribution du courant ionique) : c'est simplement la valeur de I_e quand $V_b = V_p$. Or nous avons vu que le signal électronique augmentait régulièrement avec la tension appliquée à la sonde

(voir Paragraphe III.1, Fig. 6 p. 68). La saturation n'étant pas atteinte, il nous a été impossible d'appliquer cette méthode classique [9] [13] [18] [16] et nous avons dû utiliser l'hypothèse que la densité électronique était égale à la densité ionique (électronneutralité du plasma).

Pour les mêmes raisons, nous n'avons pas pu non plus évaluer le potentiel plasma. Nos mesures montrent simplement qu'il ne peut être supérieur à quelques Volts.

III.4 Des courants en fonction du temps aux densités ioniques en fonction de l'énergie

Supposant que tous les ions sont chargés $+e$, le courant ionique de la sonde de Langmuir, $I_i(t)$, est directement proportionnel au nombre d'ions qui arrivent sur la sonde par unité de temps, $N_i(t)$: $N_i(t) = I_i(t)/e$. $N_i(t)$ est la fonction de distribution en temps des ions, et peut être reliée à la fonction de distribution en énergie, $N_i(E)$, à travers la relation classique :

$$N_i(t)dt = N_i(E)dE \quad (14)$$

et le nombre total d'ions collectés, N , vaut :

$$N = \int_t N_i(t)dt = \int_E N_i(E)dE . \quad (15)$$

La distribution $N_i(E)$ est une quantité physique plus significative que la distribution expérimentale $N_i(t)$. Du fait que l'énergie des ions résulte principalement de l'expansion du plasma, E peut être lié à t à travers la vitesse $v_i(t)$:

$$E = \frac{1}{2} m_i v_i^2(t), \quad (16)$$

avec $v_i(t) = d_{cible-sonde}/t$. On en déduit :

$$E = \frac{1}{2} m_i \frac{d_{cible-sonde}^2}{t^2} \quad (17)$$

et :

$$dE = -m_i \frac{d_{cible-sonde}^2}{t^3} dt . \quad (18)$$

Il en résulte que :

$$N_i(E) = \left| \frac{t^3}{m_i d_{\text{cible-sonde}}^2} \right| N_i(t). \quad (19)$$

Cette relation illustre le fait que les contributions aux temps courts sont considérablement renforcées lors de la mesure du signal $N_i(t)$. À titre d'exemple, $N_i(E)$ et $N_i(t)$ pour un plasma de fer sont comparés sur la Fig. 13 (a) et (b). Le maximum de signal de $N_i(E)$ est obtenu pour une énergie de 20 eV , il correspond à un temps de $13 \mu\text{s}$, bien supérieur au temps de $5 \mu\text{s}$ (134.45 eV) pour lequel le maximum de $N_i(t)$ est observé.

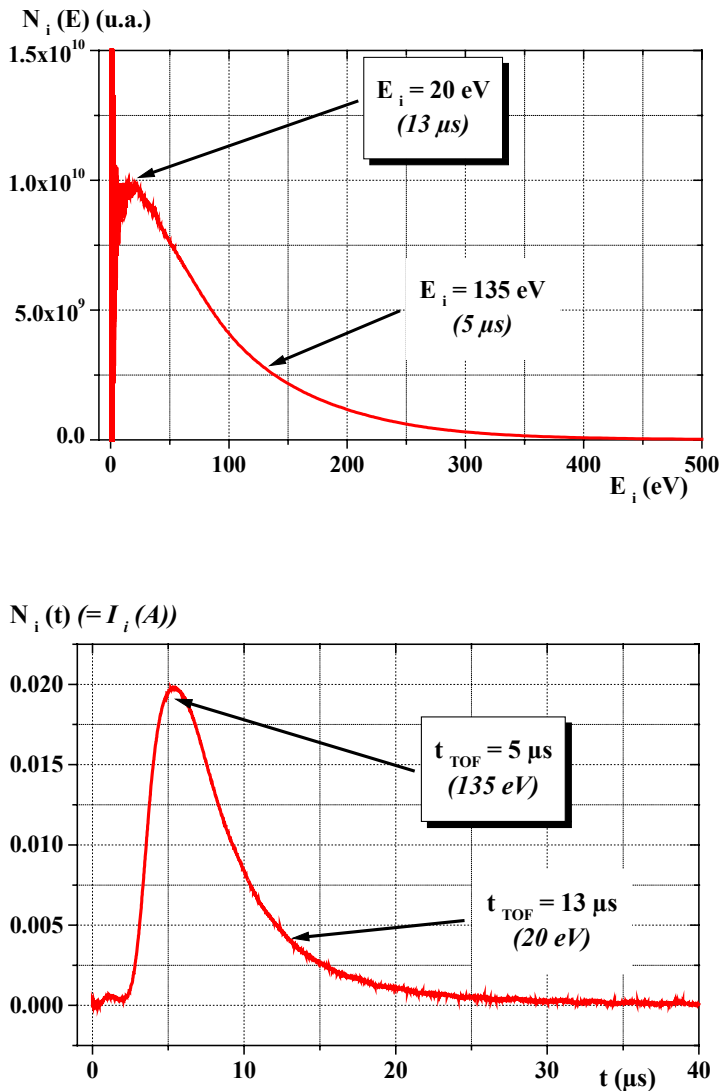


Fig. 13 : (a) Distribution énergétique et (b) distribution temporelle d'ions Fe^+ collectés par la sonde de Langmuir. $V_b = -50 \text{ V}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$, $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$ et $M = 100 \mu\text{s}$. Précisons que nous avons toujours, dans ce manuscrit, utilisé $I_i(t)$ et non $N_i(t)$, dans la relation (19), pour déterminer la fonction de distribution en énergie des ions, $N_i(E)$, ces 2 entités étant proportionnelles.

IV ÉTUDES EXPÉRIMENTALES DES PLASMAS OBTENUS

IV.1 Paramètres physiques calculés des plasmas

Rappelons que nous avons caractérisé les plasmas obtenus avec 5 éléments différents : *Al*, *Cu*, *Mo*, *Fe* et *Pt*. La densité d'énergie a été estimée à 0.9 J cm^{-2} pour *Fe* et *Pt* et à 1 J cm^{-2} , 2.5 J cm^{-2} et 5 J cm^{-2} pour *Al*, *Cu* et *Mo*. La distance cible-sonde est fixée à 10 cm pour *Fe* et *Pt* et à 7 ou 15 cm pour *Al*, *Cu* et *Mo* (voir Paragraphe II p. 63).

Pour chaque élément concerné, les propriétés physiques essentielles (masse molaire, température de fusion, énergie de cohésion, conductivité thermique et potentiel de première ionisation) sont rassemblées dans le Tab. 2. Dans le cas du fer, la température électronique T_e en fin d'expansion, la densité initiale du plasma n_e , la quantité de matière évaporée par impulsion et par unité de surface dm/dt et la vitesse du son v_s , ont été calculées à partir des expressions (1) à (4) du Chapitre 2 (voir p. 36). Ces valeurs sont reportées dans le Tab. 3. Ces propriétés calculées du plasma à l'état initial dépendent relativement peu de la nature de l'élément comme l'indiquent les relations données au Chapitre 2 (p. 36).

| | <i>Al</i> | <i>Cu</i> | <i>Mo</i> | <i>Fe</i> | <i>Pt</i> |
|---|--------------|-------------------------|-------------|-------------------------|-------------|
| Masse molaire (g mol^{-1}) | 27.0 | 63.5 | 96.0 | 55.8 | 195.1 |
| Température de fusion (K) | 933 | 1358 | 2890 | 1809 | 2045 |
| Énergie de cohésion (eV / atome) | 1.38 [19] | 1.83 [19] | > 6 | 3 - 5 | 3 - 5 |
| Conductivité thermique (300 K) ($\text{W cm}^{-1} \text{K}^{-1}$) | 2.40 | 4.0 | 1.35 | 0.80 | 0.75 |
| Potentiel de 1^{ière} ionisation (eV) | 6.0 | 7.7 | 7.1 | 7.9 | 9.0 |
| Travail de sortie (eV) | ? | <i>Ni</i> : 5.0 [44] | 4.3 [44] | <i>Ni</i> : 5.0 [44] | 6.3 [44] |

Tab. 2 : Quelques propriétés physiques des métaux à l'état massif, à partir desquels les plasmas PLD ont été générés.

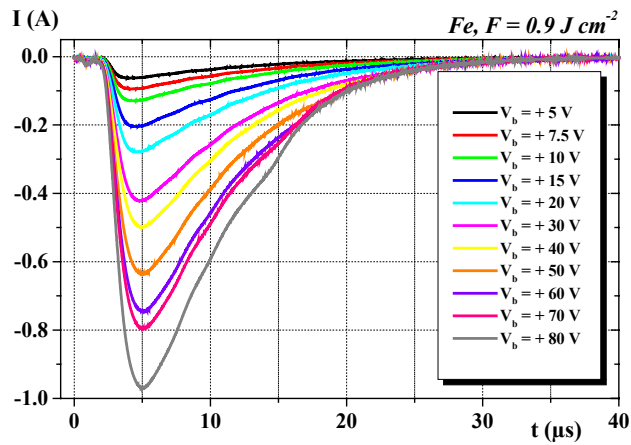
| F ($J\ cm^{-2}$) | $k_B T_e$ (eV) | n_e (m^{-3}) | dm/dt ($\mu g\ cm^{-2}\ s^{-1}$) | v_s ($m\ s^{-1}$) |
|----------------------|-----------------------|-----------------------|---|--------------------------|
| 1 | 2.5 | 1.9×10^{26} | 65×10^8 | 0.4×10^4 |
| 2.5 | 4 | 2.4×10^{26} | 100×10^8 | 0.5×10^4 |
| 5 | 6 | 2.8×10^{26} | 145×10^8 | 0.5×10^4 |
| 0.9 | 2.5 | 1.8×10^{26} | 60×10^8 | 0.4×10^4 |

Tab. 3 : Quelques valeurs des paramètres importants des plasmas générés par laser : exemple du fer.

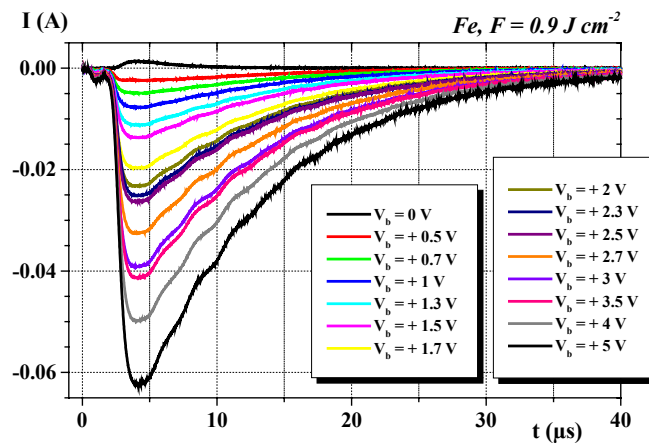
IV.2 Résultats expérimentaux

IV.2.1 Remarques préliminaires

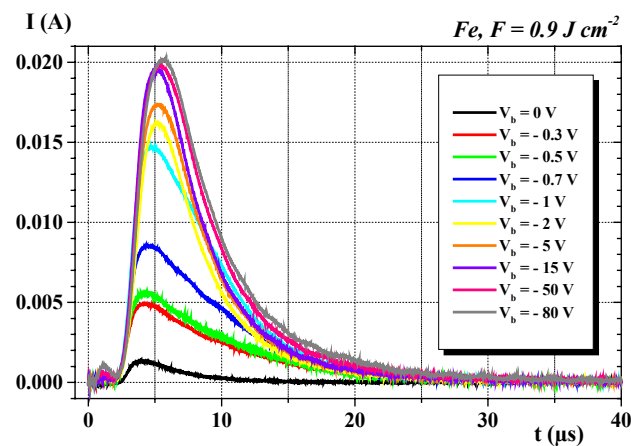
Les courbes $I(t)$ ($0\ \mu s < t < 40\ \mu s$) du courant détecté par la sonde de Langmuir en fonction du temps de vol, t , ont été mesurées pour différentes tensions fixes, V_b , appliquées à la sonde, comprises entre $+80\ V$ et $-80\ V$ (Fe et Pt) ou entre $+30\ V$ et $-30\ V$ (Al , Cu et Mo). $t = 0\ \mu s$ correspond au moment où le faisceau laser irradie la cible. À titre d'exemple, les courbes obtenues pour Fe sont présentées sur la Fig. 14. Les graphes (a) et (b) représentent le courant électronique collecté par la sonde selon $V_b > 0$ et les graphes (c) le courant ionique en fonction de $V_b < 0$. Les courbes obtenues avec les autres éléments sont présentées en Annexe A p. 169 (Fig. 1 à Fig. 10).



(a)



(b)



(c)

Fig. 14 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de fer pour V_b variant de + 80 V à - 80 V. $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$ et $M = 100 \mu\text{s}$.

Ces mesures mettent qualitativement en évidence ce que les caractéristiques $I-V_b$ nous ont permis de voir : la non-saturation du courant électronique (l'amplitude $I(t)$ augmente continuellement avec V_b), la saturation du courant ionique pour V_b suffisamment grand ($> -2 V$), la différence d'amplitude flagrante des courants ionique et électronique à polarisation de sonde égale. Des courbes $I(t)$ similaires ont été obtenues par divers auteurs pour des plasmas générés par laser (Al , Ag) dans des conditions expérimentales équivalentes aux nôtres [20] [16] [17].

IV.2.2 Densité ionique

Le courant ionique de saturation mesuré en potentiel appliqué suffisamment négatif donne directement accès à la densité des ions au sein du plasma, n_i (voir Paragraphe III.3 p. 73). Les densités obtenues pour les divers éléments sont tracées sur les Fig. 15 et Fig. 16 en fonction du temps de vol, aux diverses valeurs expérimentales de la densité d'énergie délivrée par le faisceau incident sur la cible. La distance cible-sonde est de 10 cm pour Fe et Pt et de 15 cm pour Al , Cu et Mo .

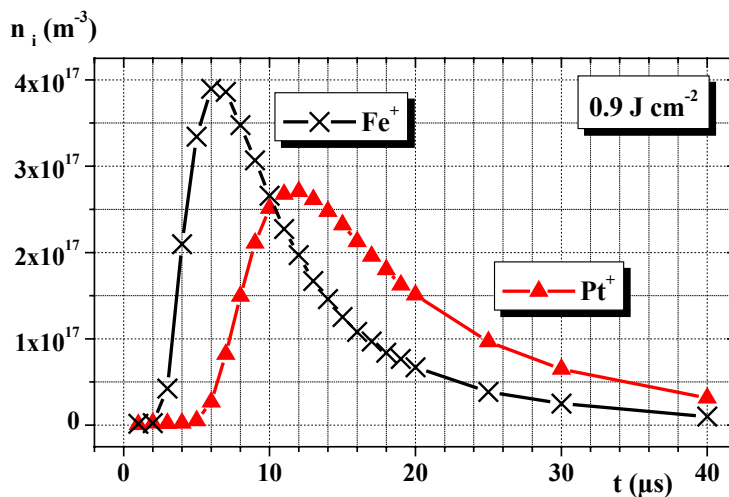


Fig. 15 : Densités ioniques (m^{-3}) des plasmas de fer et platine. $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10\text{ cm}$. $I_{i,sat}$ a été déterminé par une méthode de moyennage des valeurs expérimentales des courants ioniques collectés dans la zone de V_b suffisamment < 0 (voir Paragraphe III.3.1 p. 73).

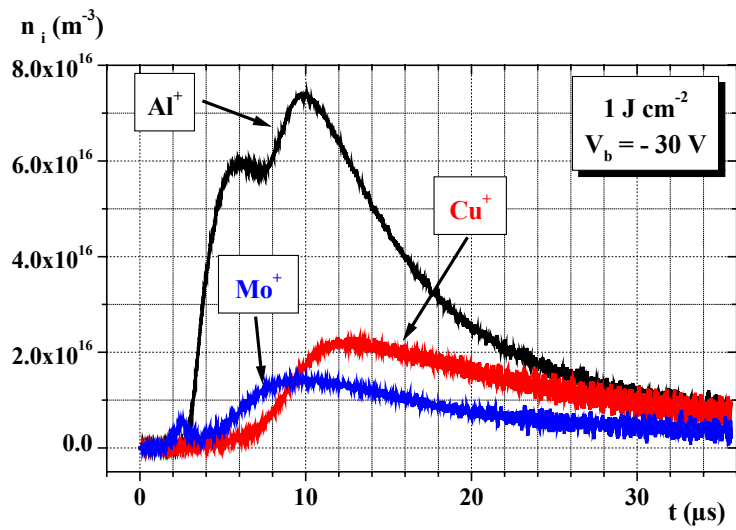
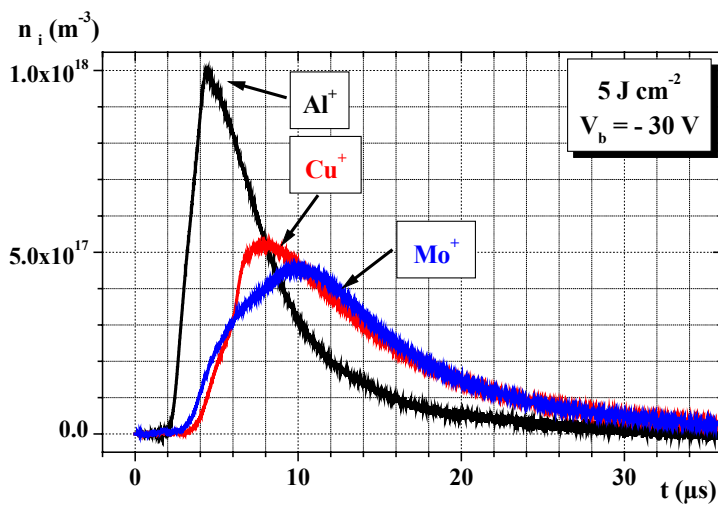
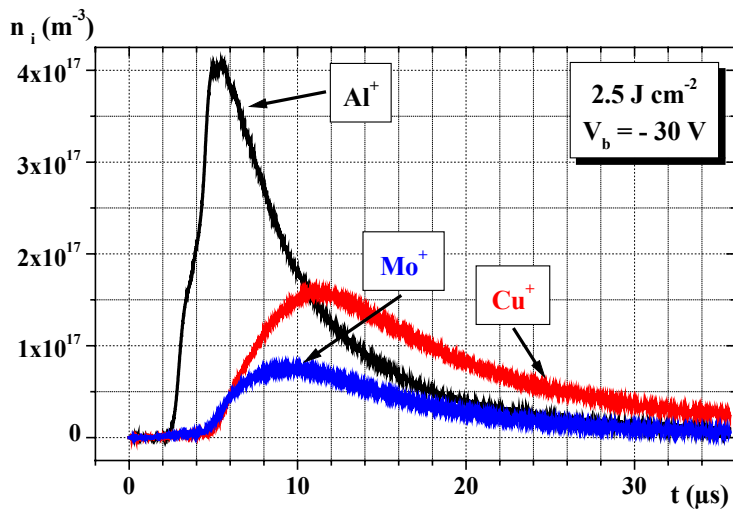
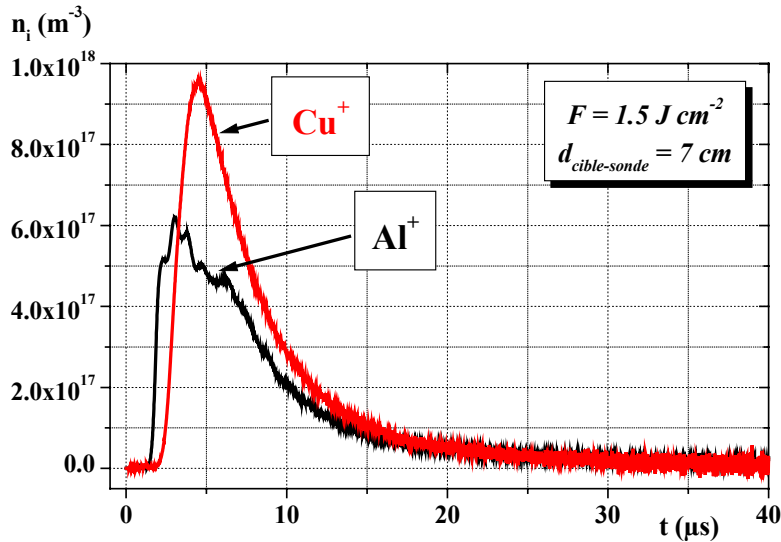


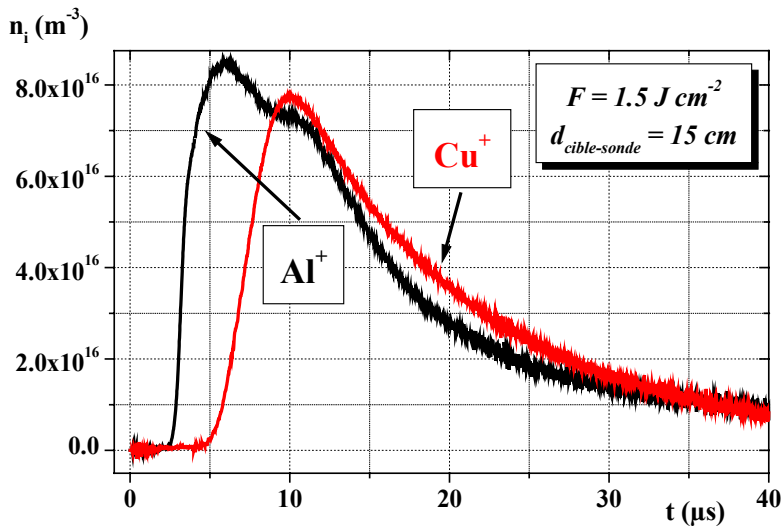
Fig. 16 : Densités ioniques (m^{-3}) des plasmas Al, Cu, Mo. (a) $F = 1 J cm^{-2}$, (b) $F = 2.5 J cm^{-2}$, (c) $F = 5 J cm^{-2}$,
 $d_{cible\ sonde} = 15 cm$,
 $V_b = -30 V$.



Pour les 2 éléments *Al* et *Cu*, n_i a été mesuré à 2 distances cible-sonde différentes, 7 et 15 cm, les autres conditions expérimentales demeurant inchangées. Les valeurs alors obtenues pour une densité d'énergie évaluée à $F = 1.5 \text{ J cm}^{-2}$ sont reportées sur la Fig. 17. Qualitativement, on remarque que, quand la distance cible-sonde double, le temps que mettent les ions pour atteindre le détecteur double également.



(a)



(b)

Fig. 17 : Nombre d'ions par m^3 en fonction du temps. $I_{i,sat}$ est directement assimilé à la mesure expérimentale à $V_b = -25 \text{ V}$. $F = 1.5 \text{ J cm}^{-2}$, (a) $d_{\text{cible-sonde}} = 7 \text{ cm}$ et (b) $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.

IV.2.3 Température électronique

Les courbes $I(V_b)$ à différents temps de vol, ont été déduites de l'ensemble des courbes $I(t)$ (voir Annexe A p. 180, Fig. 11 à Fig. 15). La contribution du signal ionique a été retranchée à ces données selon la procédure déjà décrite (voir Paragraphe III.2 p. 69). Les variations déduites du logarithme du courant électronique, $\ln(I_e)$, en fonction de V_b sont présentées en Annexe A p. 184 (Fig. 16 et Fig. 17). Les variations, en fonction de t , de la température électronique déduite de $d(\ln I_e)/dV_b$ sont présentées sur les Fig. 18 à Fig. 21.

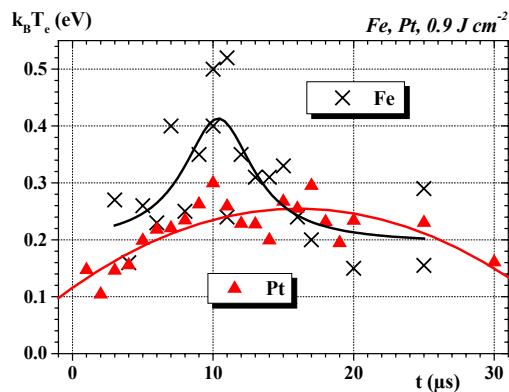
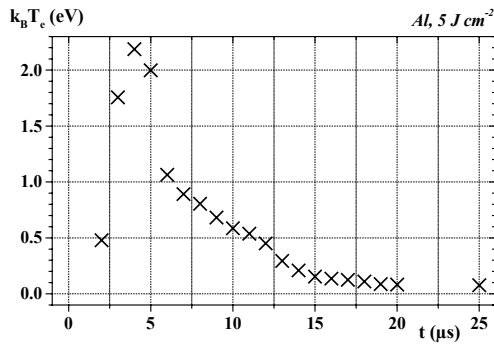
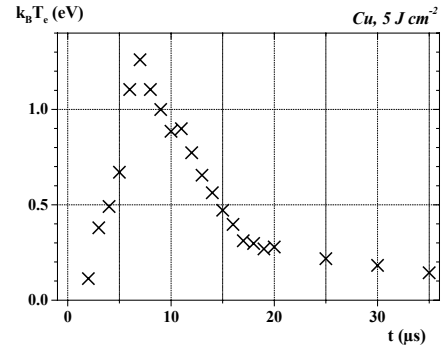


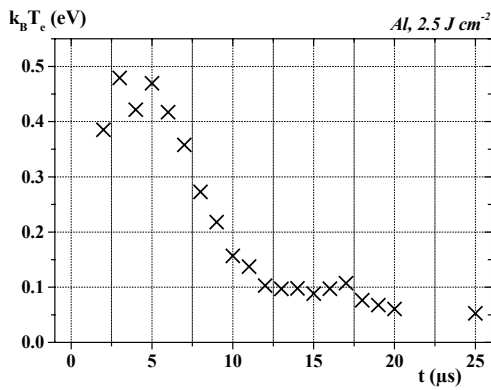
Fig. 18 : Variation temporelle de la température électronique des plasmas de fer et platine. $F = 0,9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$. Les lignes sont des guides pour les yeux.



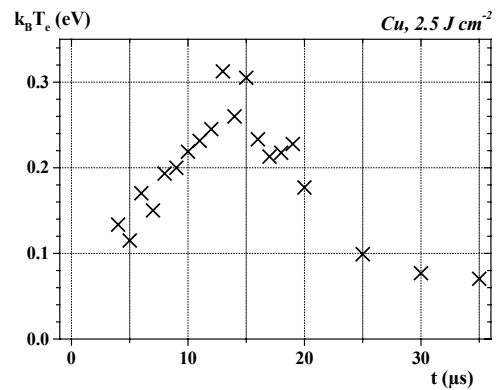
(a)



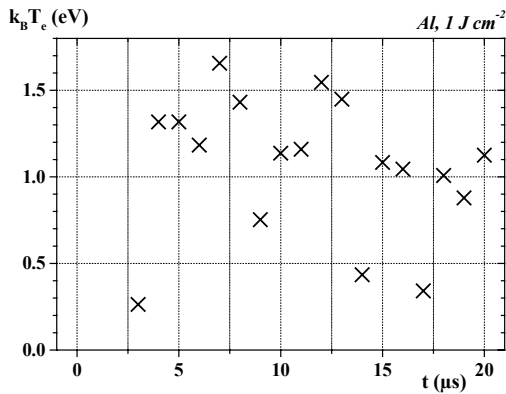
(a)



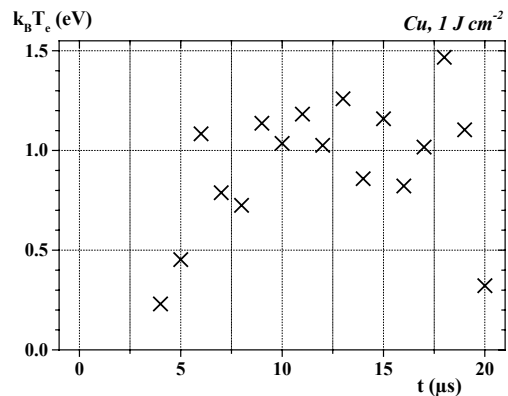
(b)



(b)



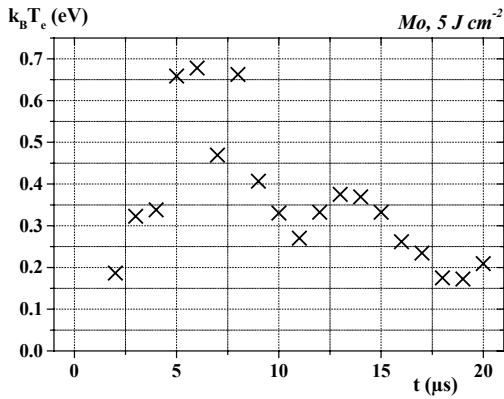
(c)



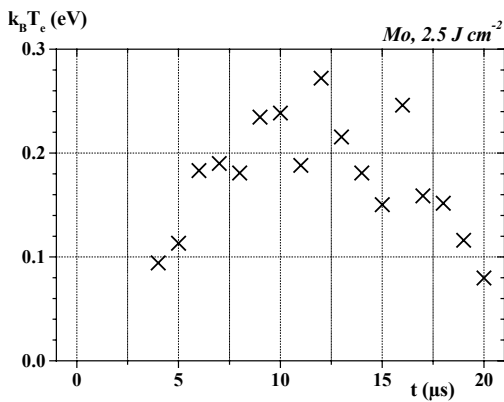
(c)

Fig. 19 : Variation temporelle de la température électronique du plasma Al. (a) $F = 5 \text{ J cm}^{-2}$, (b) $F = 2.5 \text{ J cm}^{-2}$, (c) $F = 1 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.

Fig. 20 : Variation temporelle de la température électronique du plasma Cu. (a) $F = 5 \text{ J cm}^{-2}$, (b) $F = 2.5 \text{ J cm}^{-2}$, (c) $F = 1 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.

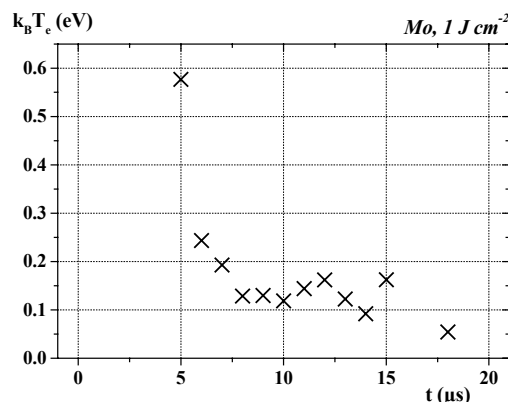


(a)



(b)

Fig. 21 : Variation temporelle de la température électronique du plasma Mo. (a) $F = 5 J cm^{-2}$, (b) $F = 2.5 J cm^{-2}$, (c) $F = 1 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 15 cm$.



(c)

À la densité d'énergie de $1 J cm^{-2}$ avec *Al* et *Cu*, T_e déduit est de l'ordre de $1 eV (10^4 K)$. L'imprécision sur la mesure est importante et nous ne sommes pas convaincus de la validité de l'analyse réalisée. Dans les autres cas, T_e , initialement de l'ordre $0.2 eV$, augmente jusqu'à une valeur maximale 3 - 5 fois supérieure, observée à un temps qui, à la précision des mesures expérimentales près, est identique au temps auquel apparaît le maximum de n_i . Au-delà, T_e diminue progressivement pour atteindre de nouveau une valeur proche de $0.1 - 0.2 eV$ à environ $25 \mu s$. Aux temps supérieurs à $\approx 25 \mu s$, l'imprécision des données expérimentales nous a empêché de dériver une valeur fiable de la température électronique.

IV.2.4 Structure à temps courts

Dans tous les systèmes étudiés, nous avons observé un pic de signal de la sonde de Langmuir, aussi bien sur les électrons que sur les ions, à un temps de l'ordre de $1 \mu s$

(Fig. 22 pour le plasma *Fe*). L'énergie cinétique associée des ions est supérieure à 1 keV . Ces espèces représentent moins de 1% de l'ensemble des espèces détectées.

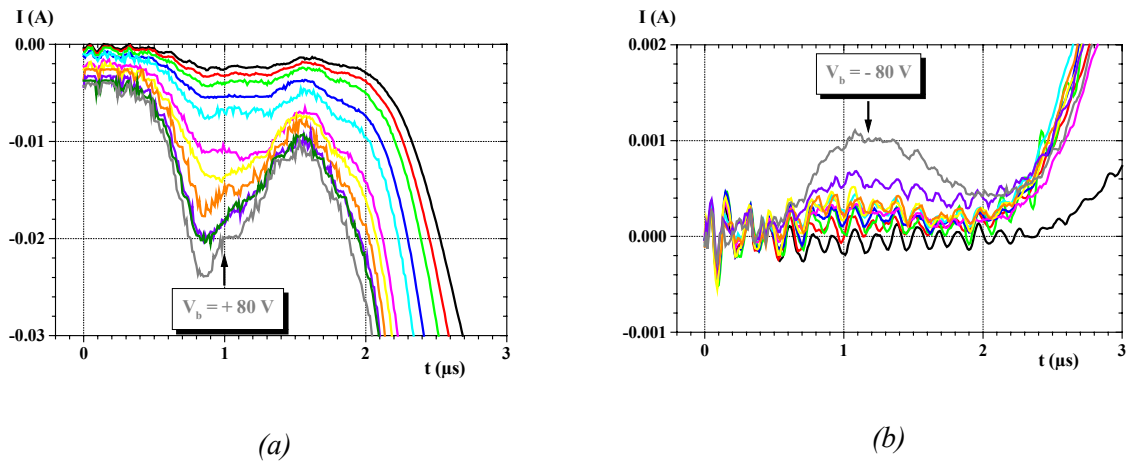


Fig. 22 : Agrandissement effectué à partir de la Fig. 14 (p. 78) de $I(t)$ en fonction de V_b collecté par la sonde de Langmuir insérée au sein d'un plasma de fer. (a) courant électronique et (b) courant ionique. Les couleurs représentant les différents potentiels sont identiques à la Fig. 14 (p. 78).

IV.3 Analyse et discussion

IV.3.1 Taux d'ablation

Pour *Al*, *Cu* et *Mo*, les variations expérimentales du courant ionique de saturation en fonction de la densité d'énergie sont présentées sur la Fig. 23 (p. 87). Sur ces courbes, aucun changement de régime n'est clairement manifeste. À partir d'elles, l'évaluation des seuils d'ablation n'est donc pas facile. À forte irradiation, la densité ionique doit varier comme $A^{5/16} \times I^{1/4}$ (où A représente la masse molaire en g mol^{-1} et I est l'irradiance ; voir relation (2) Chapitre 2 p. 36). Nous avons tracé n_i en fonction de ce paramètre (Fig. 24 p. 87). Les seuils d'ablation ont alors été déduits en supposant qu'entre 2.5 J cm^{-2} et 5 J cm^{-2} , on a déjà atteint le régime de variation linéaire caractéristique des fortes densités d'énergie. Les valeurs obtenues (« exp. ») sont présentées dans le Tab. 4 (p. 86). Elles sont en accord raisonnable avec celles reportées par d'autres auteurs (« th. »), également présentées dans ce tableau.

À densité d'énergie fixe, les variations des taux d'ablation en fonction de la température de fusion des matériaux, T_{fus} , sont présentées sur la Fig. 25 (p. 87). On observe une nette décroissance du taux d'ablation lorsque T_{fus} augmente. Cette observation est en accord avec

celles reportées par Thestrup *et al.* [21]. Elle implique que l'ablation met alors en jeu l'absorption par la cible d'une fraction non négligeable de l'énergie du faisceau incident. Le seuil d'ablation et le taux d'ablation dépendent aussi de la réflectivité de la cible et de sa conductivité thermique. Le faible nombre d'éléments étudiés ne nous permet pas de mettre en évidence un lien clair des seuils et taux d'ablation avec ces paramètres. Cependant, par comparaison à *Al* et *Mo*, on note que le seuil d'ablation du cuivre est plus haut et le taux de dépôt plus faible qu'on ne les déduirait de la valeur de sa température de fusion. Or, le cuivre associe forte réflectivité dans le vert et haute conductivité thermique (Tab. 2 p. 76).

À forte irradiance, n_i doit augmenter avec A (variation en $A^{5/16} \times I^{1/4}$). Nous n'avons pas observé cette loi. Nous notons cependant que les taux d'ablation entre éléments deviennent progressivement plus semblables lorsque I augmente (Fig. 24 p. 87). En fait, les densités d'énergie que nous avons utilisées dans ce travail ($< 10^9 \text{ W cm}^{-2}$) sont à la limite du domaine d'applicabilité des relations (1) à (4) du Chapitre 2 (p. 36) [22] [23] ce qui peut expliquer ce désaccord.

| | $F_s \text{ (J cm}^{-2}\text{) exp.}$ | $F_s \text{ (J cm}^{-2}\text{) th.}$ | $\lambda \text{ (nm) / } \tau \text{ (ns)}$ | Références |
|------------------|---------------------------------------|--------------------------------------|---|------------|
| <i>Al</i> | 1.1 | < 1 | 355 / 6 | [24] |
| | | 0.9 | 1064 / 9 | [19] |
| <i>Cu</i> | 1.5 | 2 | 1064 / 20 | [25] |
| | | 1.7 | 532 / 6 | [26] |
| | | 2 | 511 / 40 | [27] |
| | | 3.5 | 308 / 20 | [28] |
| <i>Mo</i> | 1.8 | | | |
| <i>W</i> | | 3.2 | 532 / 9 | [29] |
| <i>Fe</i> | | 1.5 | 532 / 9 | [29] |
| | | 4.16 | 1064 / 10 | [30] |

Tab. 4 : Seuils d'ablation, F_s , observés dans nos expériences (*exp.*) comparés à ceux reportés dans la littérature (*th.*). Les taux de répétition des lasers, F_{rep} , vont de 10 à 30 Hz. Le tungstène est, comme le molybdène, un métal réfractaire. Dans la réalité, on observe un très faible taux de dépôt à des valeurs de densités d'énergie, F , inférieures aux densités d'énergie seuil ici déduites, F_s . L'ablation à faible régime peut être due à des hétérogénéités du faisceau laser ou à d'autres mécanismes d'ablation que ceux dominants à plus forte irradiation.

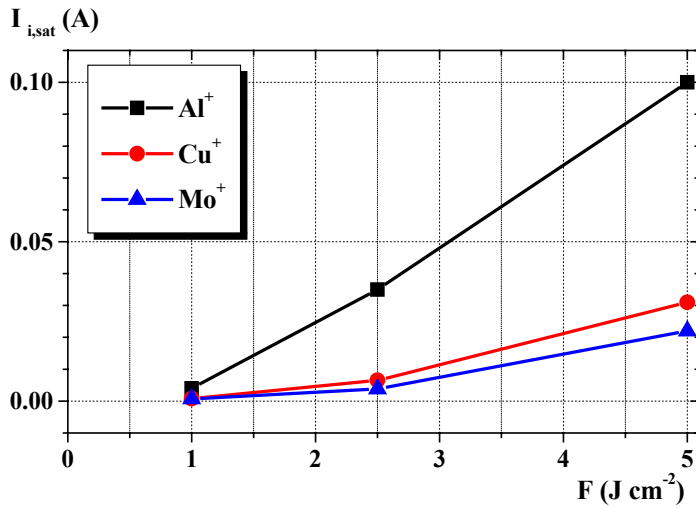


Fig. 23 : Variation du courant ionique de saturation (au pic de temps de vol), en fonction de la densité d'énergie incidente, des plasmas Al, Cu et Mo. $d_{cible-sonde} = 15\ cm$, $V_b = -30\ V$.

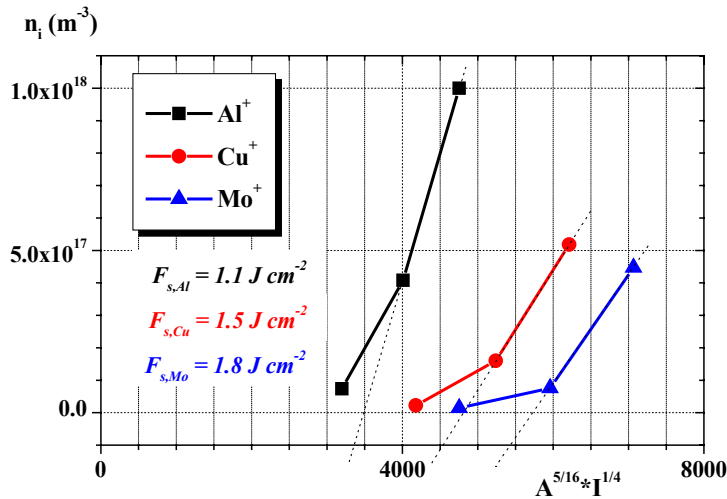


Fig. 24 : Variation du nombre d'ions au pic de temps de vol, en fonction de $A^{5/16} * I^{1/4}$, des plasmas Al, Cu et Mo. $d_{cible-sonde} = 15\ cm$, $V_b = -30\ V$. Rappelons que A est le nombre représentatif de la masse molaire et I l'irradiance en $W\ m^{-2}$.

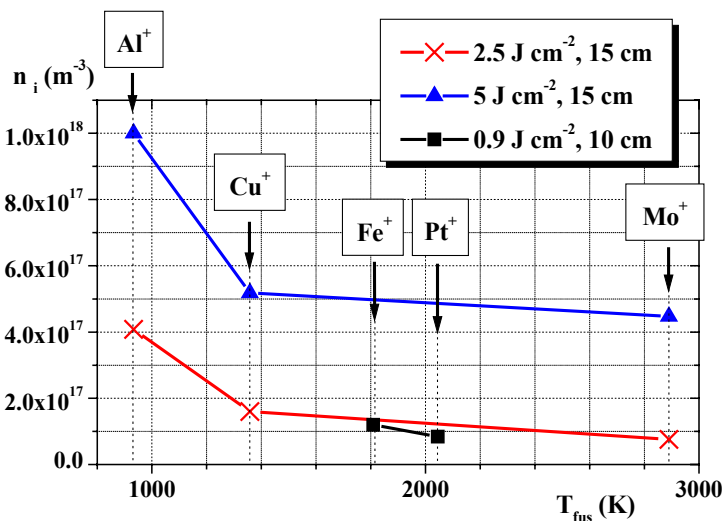


Fig. 25 : Densité ionique au pic de temps de vol en fonction de la température de fusion des métaux et selon la densité d'énergie. $d_{cible-sonde} = 15\ cm$ pour Al, Cu et Mo ($V_b = -30\ V$) et $10\ cm$ pour Fe et Pt. Les données à $10\ cm$ ont été renormalisées par $(10/15)^3$ pour tenir compte de la différence des distances avec la série de mesures à $15\ cm$.

IV.3.2 Effet de la distance cible-substrat

Les courants ioniques de saturation, au maximum du temps de vol, en fonction de $1/d_{c-s}^3$, où d_{c-s} est la distance cible-sonde, sont tracés sur la Fig. 26 pour *Al* et *Cu* à $2.5 J cm^{-2}$ et $5 J cm^{-2}$. Dans tous les cas, une variation approximativement linéaire est observée. Comme nous l'avons expliqué dans le Chapitre 2 (p. 37), un tel comportement démontre que l'expansion du plasma peut être considérée comme inertielle, dans cette gamme de temps et de distances. Dans le modèle de Anisimov *et al.* [31], l'expansion devient inertielle lorsque la dimension d'expansion est de l'ordre de 10 fois le diamètre initial de la plume, c'est à dire celui du faisceau incident. La dimension d'expansion déduite est de l'ordre de 3 à 5 cm dans notre cas. Toutes les mesures de temps de vol ont été réalisées à des distances supérieures.

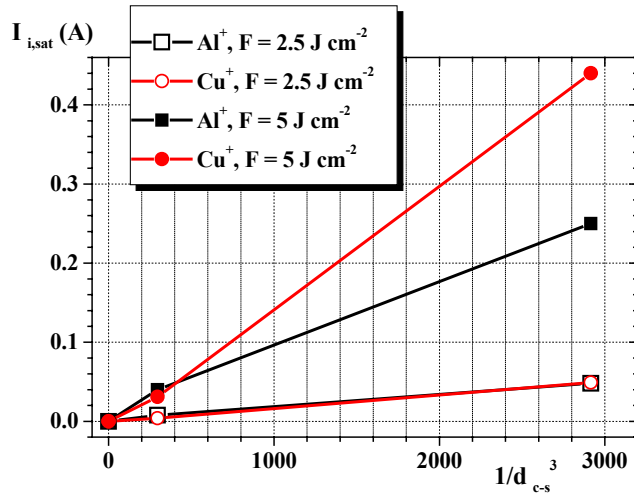


Fig. 26 : $I_{i,sat}$ (déterminée à $V_b = -25 V$) en fonction de l'inverse du cube de la distance cible-sonde (prise en m).

Afin de tester la validité de la loi d'échelle en t^{-3} sur l'ensemble du temps de mesure, les courbes de temps de vol mesurées à 15 cm et à une densité d'énergie de 2.5 et $5 J cm^{-2}$ ont été renormalisées à celles mesurées à 7 cm. Le coefficient de normalisation est théoriquement égal au rapport des distances cible-sonde élevé au cube, en l'occurrence $(15/7)^3 = 9.84$. Pratiquement, le positionnement de la sonde n'était pas d'une telle précision. Pour s'affranchir de l'incertitude liée au positionnement de la sonde, les coefficients de normalisation ont été déterminés afin d'obtenir le meilleur recouvrement des données. Pour les mesures faites avec *Al*, le coefficient est de 7.5 et pour les mesures faites avec *Cu* il est de 12.9. Ces coefficients correspondent à des rapports entre distances de $7.5^{1/3} = 1.96$ et $12.9^{1/3} = 2.34$ à comparer au rapport théorique de $15/7 = 2.14$. Les courbes obtenues sont

présentées sur la Fig. 27. Pour chacune des densités d'énergie considérées, les variations du courant ionique à saturation en fonction de l'inverse de la vitesse sont extrêmement similaires, ce qui confirme le caractère pratiquement inertiel de l'expansion.

On doit noter aussi que la sonde de Langmuir ne détecte que des ions. La renormalisation en t^{-3} des intensités ioniques détectées signifie que les effets de recombinaison peuvent être négligés, en accord avec des études déjà citées [32] [23].

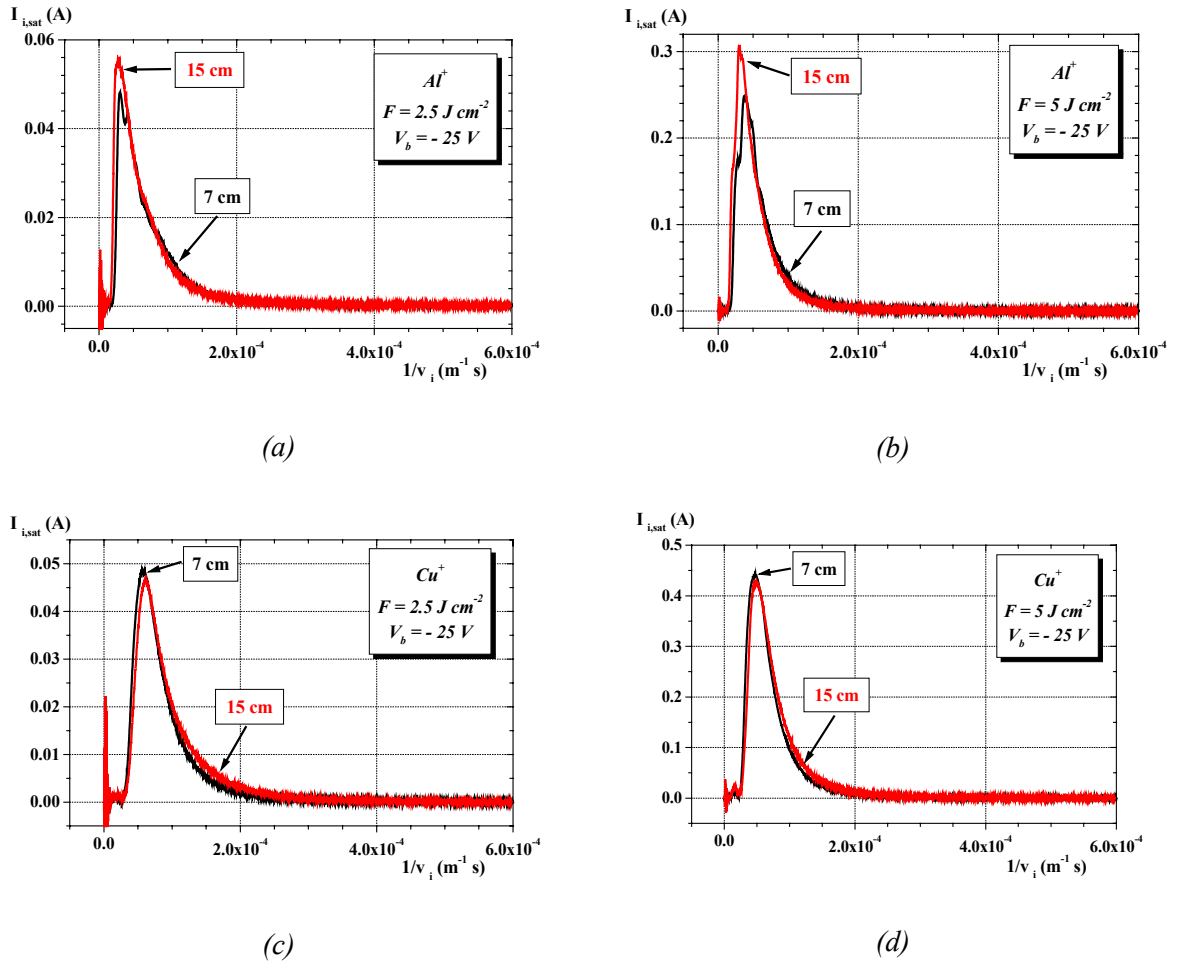


Fig. 27 : Courant ionique collecté par la sonde ($V_b = -25 V$) en fonction de l'inverse de la vitesse à 7 et 15 cm de la cible, pour les plasmas Al (a) $F = 2.5 J cm^{-2}$, (b) $F = 5 J cm^{-2}$ et Cu (c) $F = 2.5 J cm^{-2}$, (d) $F = 5 J cm^{-2}$. Les coefficients de normalisation sont de 7.5 pour Al et 12.9 pour Cu.

IV.3.3 De l'énergie des ions à la température électronique

Les courbes de temps de vol $I_{i,sat}(t)$ du courant ionique de saturation ont été transformées en courbe $I_{i,sat}(E)$ en fonction de l'énergie cinétique, E_i , comme cela a été

expliqué au Paragraphe III.4 (p. 74). Elles sont présentées en échelle logarithmique sur les Fig. 28 et Fig. 29. Les énergies ioniques moyennes obtenues sont rassemblées dans le Tab. 5 (p. 92) pour Cu^+ , Fe^+ et Pt^+ . À une densité d'énergie donnée, l'énergie moyenne est constante, indépendante de la distance cible-substrat. Une fois encore, c'est une manifestation du caractère inertiel de l'expansion. Ce comportement illustre aussi que les libres parcours moyens des recombinaisons sont supérieurs aux distances cible-substrat considérées ici. Ces énergies moyennes obtenues sont proches de celles reportées dans la littérature (voir Chapitre 2 p. 47) pour des plasmas évaporés dans des conditions similaires (Fe [33] [34] [35] par exemple).

Par ailleurs, l'énergie moyenne augmente avec la densité d'énergie à distance cible-sonde fixe. En effet, l'énergie absorbée par la plume de plasma est plus importante à grande densité d'énergie. La température de la plume est donc plus élevée, et l'énergie cinétique des ions plus grande.

Nous venons de montrer que, à nos temps de mesure, l'expansion peut être considérée comme inertielle. Ceci implique que la majeure partie de l'énergie thermique initiale, portée par les électrons et les ions, a été transformée en énergie cinétique essentiellement portée par les ions⁵. La température électronique initiale est alors reliée à l'énergie cinétique des ions par la relation :

$$k_B T_e = \frac{E_c}{3}. \quad (20)$$

Les valeurs des températures initiales déduites sont de l'ordre de $T_{e,i} \approx 20 \times 10^4 K$. En fait, plus l'énergie des espèces évaporées est importante, plus leur distribution angulaire est étroite. La valeur de T_e obtenue est donc une valeur par excès. Nous montrerons au prochain chapitre que la température électronique peut être évaluée de façon plus précise à partir des mesures sous champ magnétique.

⁵ En fait, l'énergie cinétique du système vaut : $E_c = \frac{1}{2} m v_i^2 + \frac{3}{2} k_B T_e = 2 \times \frac{3}{2} k_B T_{e,i}$. Or, nous avons vu que le terme $\frac{3}{2} k_B T_e$ était inférieur à $1 eV$ donc négligeable (voir Paragraphe IV.2.3 p. 82). Le terme $2 \times \frac{3}{2} k_B T_{e,i}$ représente l'énergie thermique initiale (portée par les électrons et les ions). D'où la relation (20).

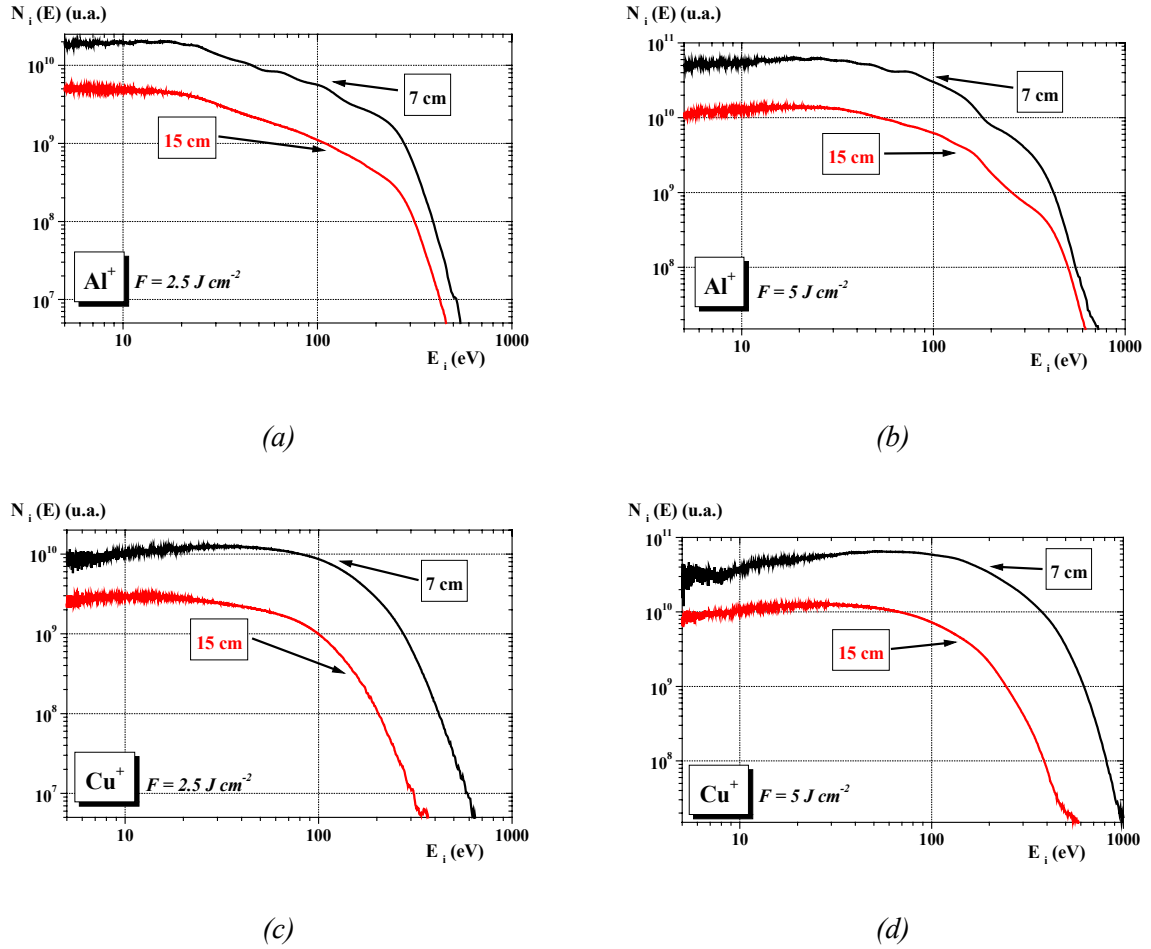


Fig. 28 : Distributions énergétiques (graphes tracés en log-log), en fonction de $d_{cible-sonde}$, des ions Al^+ pour des densités d'énergie de (a) $F = 2.5 J cm^{-2}$ et (b) $F = 5 J cm^{-2}$, et Cu^+ pour (c) $F = 2.5 J cm^{-2}$ et (d) $F = 5 J cm^{-2}$. $V_b = -25 V$. À titre de repère, on appelle 7 et 15 cm les distances cible-sonde, mais la correction sur l'énergie cinétique des ions, correspondant aux distances cible-sonde réelles, a été effectuée.

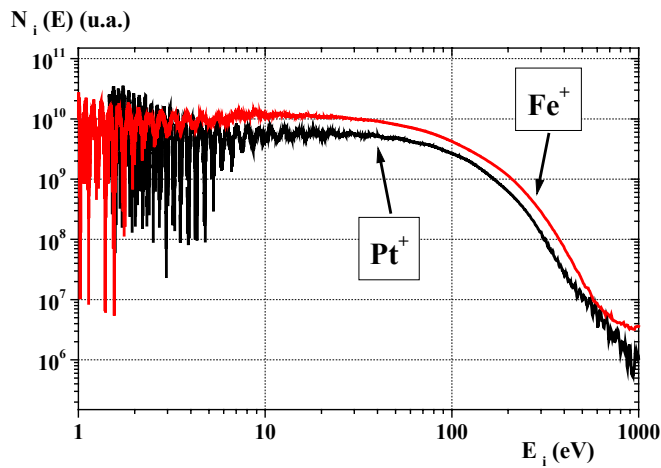


Fig. 29 : Distribution énergétique de Pt^+ et Fe^+ pour $V_b = -80 V$ (graphe tracé en log-log). $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$.

| | | |
|--|---|---|
| Cu⁺ | $F = 2.5 \text{ J cm}^{-2}$ | $F = 5 \text{ J cm}^{-2}$ |
| $d_{\text{cible-sonde}} = 7 \text{ cm}$ | 70 eV | 100 eV |
| $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$ | 60 eV | 100 eV |
| $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$ | $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$ | |
| Fe⁺ | 60 eV | |
| Pt⁺ | 60 eV | |

Tab. 5 : Énergies moyennes des ions des plasmas Cu ($V_b = -25 \text{ V}$), Fe et Pt ($V_b = -80 \text{ V}$). Ces énergies moyennes ont été obtenues graphiquement.

IV.3.4 Énergie cinétique des ions et température électronique : d'un élément à l'autre, et en fonction de la fluence

Sur la base du lien que nous venons de décrire entre E_c et T_e , la relation (20) (p. 90) suggère de tracer la vitesse des ions, v_i , en fonction de $1/\sqrt{A}$ où A est comme précédemment le nombre représentatif de la masse ionique. Ceci a été fait pour l'ensemble des systèmes étudiés et aux diverses densités d'énergie utilisées (Fig. 30). À densité d'énergie fixe, une variation pratiquement linéaire est observée. La pente de la variation est divisée par un facteur de l'ordre de 1.25 lorsque la fluence décroît de 5 J cm^{-2} à 0.9 J cm^{-2} . Ce facteur est exactement celui qui est prévu théoriquement ($E \propto I^{0.5}$, voir relation (1) Chapitre 2 p. 36. $I \equiv$ irradiance).

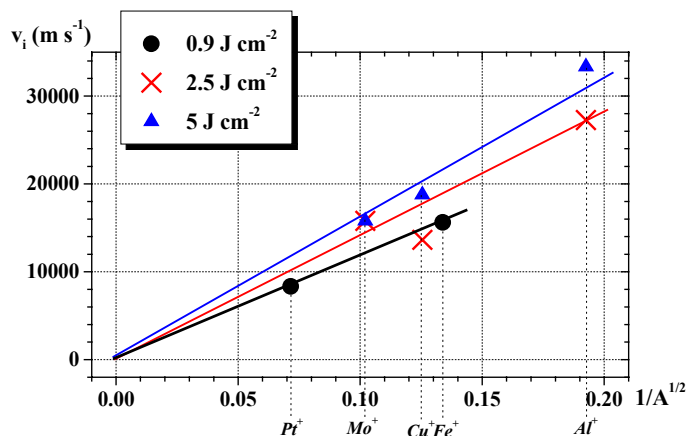


Fig. 30 : Vitesse des ions au pic de temps de vol en fonction de $1/\sqrt{A}$ en fonction des diverses densités d'énergie. $d_{\text{cible-substrat}} = 10 \text{ cm}$ (Fe, Pt) et 15 cm (Al, Cu, Mo, où $V_b = -30 \text{ V}$).

IV.3.5 Structures à temps courts

La présence d'ions très rapides a été notée dans plusieurs études de plasmas générés par laser [18] [36] [37]. Les expériences de spectroscopie en temps de vol sur un plasma de Fe [38] révèlent que des espèces multichargées existent, distribuées autour d'une énergie qui est supérieure d'un ordre de grandeur à celle de la majorité des espèces monochargées [39] [40]. Par analogie, nous associons les espèces de très fortes énergies que nous avons observées à des ions multichargés. Leur faible nombre nous a empêché de les caractériser de façon approfondie.

IV.3.6 Températures électroniques

IV.3.6.1 Une évaluation de la constante adiabatique γ

Pour un élément de matière donné et dans le cas d'une expansion adiabatique, la température et la densité sont reliées par la relation (voir Chapitre 2, Paragraphe I.3, p. 38) :

$$T_e \propto n_i^{\gamma-1}. \quad (21)$$

Dans la discussion qui suit, nous considérons l'expansion à partir d'un moment initial qui est typiquement la fin de l'impulsion laser. La température électronique est celle que nous venons d'évaluer (20 eV) et la densité initiale est de $n_{i,e} \approx 10^{26} \text{ m}^{-3}$ (Tab. 3 p. 77). Nous désignons par $T_e(t_{max})$ les températures au temps t_{max} correspondant au maximum du courant ionique dans nos mesures de temps de vol, $T_e(t_{max}) \approx 1 \text{ eV}$ (10^4 K). De même, $n_i(t_{max})$ désigne les densités ioniques au maximum du temps de vol, qui sont de l'ordre de 10^{18} m^{-3} . $T_{e,i}/T_e(t_{max}) \approx 20$ et $n_{e,i}/n_e(t_{max}) \approx 10^8$. Nous déduisons $\gamma \approx 1.2$, valeur bien inférieure à celle de $5/3$ d'un gaz monoatomique. Ce résultat est en accord qualitatif avec les mesures de températures électroniques de Rumsby [32] ainsi qu'avec les résultats déduits de l'analyse de la distribution angulaire de la plume (voir Paragraphe IV.3.7 p. 95 et les références [21] et [41] par exemple). Il a été attribué au fait que les effets de recombinaison doivent réduire profondément le refroidissement du plasma au moins lors de la première phase de l'expansion.

IV.3.6.2 Lien entre $n_i(t)$ et $T_e(t)$ mesurés à la sonde de Langmuir

La relation (21) s'applique en principe à un élément de matière en expansion. On peut se demander si elle peut permettre de relier les températures électroniques et les densités ioniques déduites des mesures de temps de vol. Lors de ces mesures, on regarde arriver les ions du plasma à un point donné. Soit $T_e(t_1)$ et $T_e(t_2)$ les températures électroniques déduites aux temps t_1 et t_2 et soit $n_i(t_1)$ et $n_i(t_2)$ les densités ioniques correspondantes. Soit $T_{e,i,1}$ et $n_{e,i,1}$ les températures électroniques et densités ioniques initiales pour l'élément de matière mesuré au temps t_1 et soit $T_{e,i,2}$ et $n_{e,i,2}$ celles concernant l'élément de matière arrivé au temps t_2 . De (21), on peut écrire :

$$\frac{T_{e,i,1}}{T_e(t_1)} = \left(\frac{n_{e,i,1}}{n_i(t_1)} \right)^{\gamma-1} \quad (22)$$

et :

$$\frac{T_{e,i,2}}{T_e(t_2)} = \left(\frac{n_{e,i,2}}{n_i(t_2)} \right)^{\gamma-1} . \quad (23)$$

Au stade initial de l'expansion, nous supposons le plasma homogène [32]. Avec cette hypothèse, $T_{e,i,1} = T_{e,i,2}$ et $n_{e,i,1} = n_{e,i,2}$. On en déduit :

$$\frac{T_e(t_1)}{T_e(t_2)} = \left(\frac{n_i(t_1)}{n_i(t_2)} \right)^{\gamma-1} . \quad (24)$$

Pour l'ensemble de nos mesures, le logarithme de la température électronique est tracée sur la Fig. 31 en fonction du logarithme de la densité ionique. Une relation approximativement linéaire est observée. La pente vaut ≈ 0.9 , ce qui correspondrait à une valeur de γ de 1.9, valeur bien supérieure à celle de 1.2 déduite au paragraphe précédent. Au stade initial, la faible valeur de γ est due à l'échauffement qui résulte des effets de recombinaison. L'analyse présentée dans ce paragraphe concerne des temps d'expansion de 10 à 50 μs . À ces temps, les effets de recombinaison peuvent être négligés et le paramètre γ caractérisant le refroidissement du plasma doit augmenter.

Mais nous notons aussi que la valeur de γ est supérieure à la valeur maximale $\gamma \approx 5/3 = 1.67$.

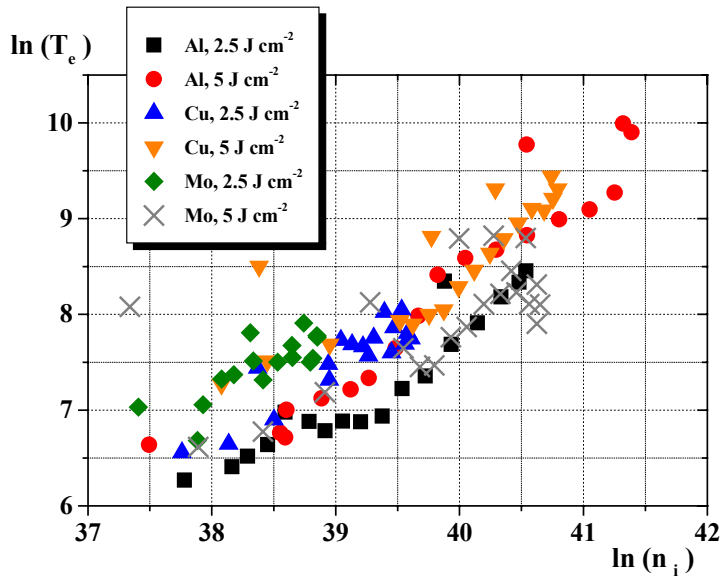


Fig. 31 : Détermination de γ à partir de $\ln(T_e) = f(\ln(n_i))$, pour plusieurs densités d'énergie. La pente vaut ≈ 0.9 .
 $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$ et
 $V_b = -30 \text{ V}$.

Nous attribuons ce phénomène au fait que les hétérogénéités du plasma ne peuvent être négligées comme nous l'avons supposé. Les zones de densité moindre atteignent plus rapidement le régime de découplage entre ions et électrons que celles de forte densité, pour lequel le refroidissement est plus rapide. Ainsi, les espèces les plus froides se refroidissent encore plus vite. Lors des mesures de temps de vol, lorsque t augmente au-delà du maximum de densité, on échantillonne des régions qui se refroidissent de plus en plus rapidement. Lorsqu'on les relie entre elles à travers une loi de type $T_e \propto n_i^{\gamma-1}$, la valeur de γ déterminée est artificiellement supérieure à la valeur $5/3$.

IV.3.7 Distributions angulaires

Nous présentons brièvement dans ce paragraphe des mesures de la distribution angulaire du dépôt. Elles servent à une autre évaluation de γ , elles seront aussi utilisées au chapitre suivant pour comparer les dépôts sous champ magnétique à ceux en champ magnétique nul.

IV.3.7.1 Paramètres et arrangements expérimentaux

La variation du taux de dépôt en fonction de l'angle d'expansion des espèces par rapport à la normale à la cible a été étudié dans le cas du cuivre. Pour ces mesures, on a utilisé des cibles percées d'un trou de forme conique (Fig. 32). 3 cibles coniques, d'angles au sommet

50°, 30°, 10° et 1 cible planaire (Fig. 4 p. 64) ont été préparées. L'angle de collection, θ , par rapport à la normale à la cible vaut respectivement 40°, 60°, 80° et 0°.

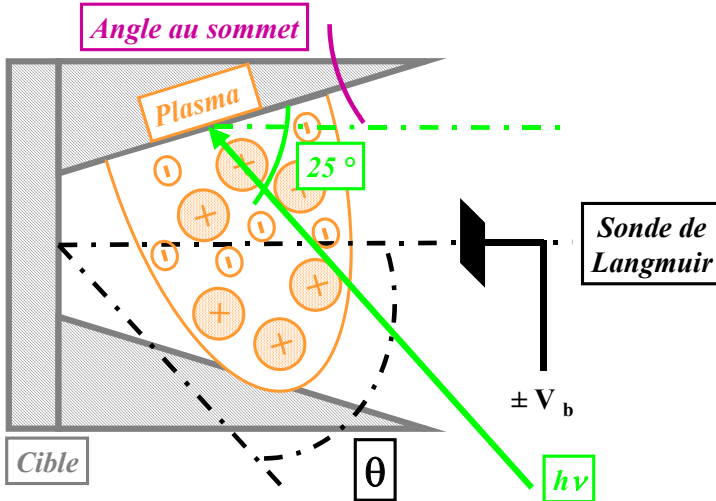


Fig. 32 : Arrangement expérimental utilisé pour la caractérisation, par sonde de Langmuir, de la distribution angulaire des espèces du plasma. Les détails expérimentaux sont décrits dans le Paragraphe II (p. 63).

Lors de ces mesures, la densité d'énergie de la radiation laser a été fixée à 5 J cm^{-2} . Chaque acquisition a été effectuée sur une période $M = 100 \mu\text{s}$, à $d_{\text{cible-sonde}} = 7 \text{ cm}$. La polarisation de la sonde (de surface $S = 1.80 \times 10^{-5} \text{ m}^2$ pour 0° , $S = 1.95 \times 10^{-5} \text{ m}^2$ pour 40° et 60° , $S = 1.70 \times 10^{-5} \text{ m}^2$ pour 80°) a été fixée à $V_b = -25 \text{ V}$.

IV.3.7.2 Résultats et analyse

À chaque angle de mesure, le signal $I(t)$ a été collecté. Le nombre d'ions en fonction du temps, pour chacun des angles, est tracé sur la Fig. 33. Plus on s'éloigne de la normale à la cible, plus le temps de vol des ions augmente et donc l'énergie cinétique diminue. C'est une caractéristique connue du dépôt laser pulsé : la distribution en énergie des ions est fortement piquée le long de la normale à la cible (voir Chapitre 2 Paragraphe II.7 p. 47).

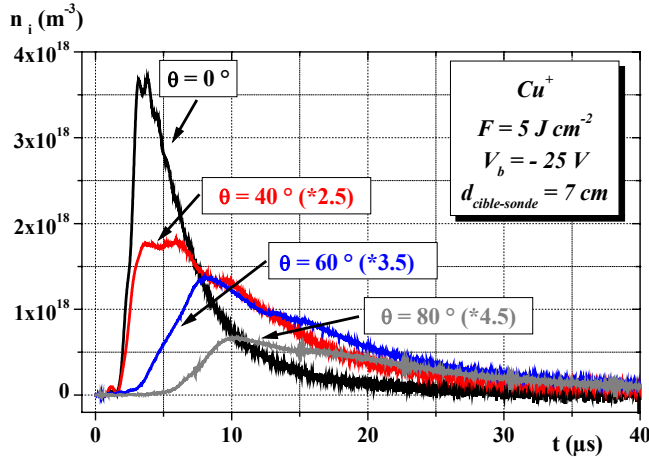


Fig. 33 : Densités ioniques en fonction du temps de vol pour $\theta = 0^\circ$, 40° , 60° et 80° . Les mesures selon les 3 derniers angles sont multipliés par un facteur de respectivement 2.5, 3.5 et 4.5. $V_b = -25 V$, $F = 5 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 7 cm$.

Nous avons analysé ces mesures en utilisant le modèle d'expansion adiabatique proposé par Anisimov *et al.* [31]. Les variations angulaires expérimentales⁶ du taux de dépôt ont été comparées aux variations calculées (Fig. 34) en utilisant la relation (8) du Chapitre 2 (p. 39). Ces mesures sont peu précises en raison du caractère fragmentaire de nos études. Cependant, le caractère très fortement directionnel de la plume est clairement mis en évidence. Le paramètre k déduit (voir Chapitre 2 Paragraphe I.3 p. 39) vaut 2 pour tous les systèmes étudiés. Dans le modèle [31], k dépend du paramètre $\sigma = Z_0/R_0$, où Z_0 est l'épaisseur initiale de la plume et R_0 son rayon initial. $Z_0 \approx v_s \tau \approx 30 \mu m$ (voir Tab. 3 p. 77) et $R_0 \approx 3 mm$, d'où $\sigma \approx 0.01$ et la valeur de γ déduite est de l'ordre de 1.2. Cette valeur en accord avec celle évaluée au début du Paragraphe IV.3.6.1 (p. 93).

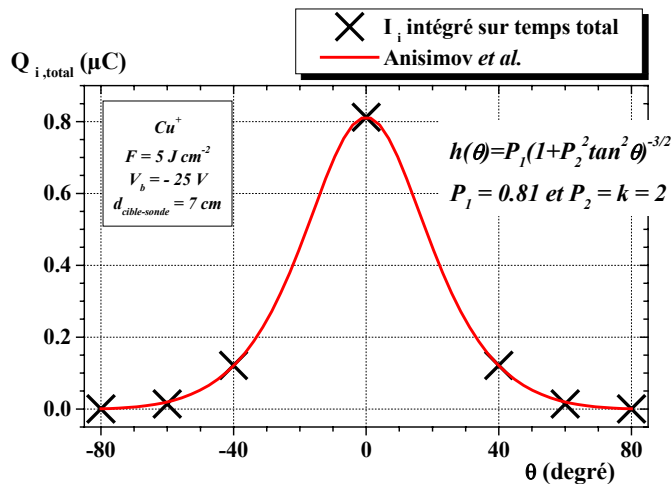


Fig. 34 : Distribution angulaire du courant ionique intégré sur le temps total. Cu, $V_b = -25 V$, $F = 5 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 7 cm$. Est superposé le profil de dépôt prévu par le modèle d'Anisimov (paramètres de calculs sur le graphe). $Q_{i,total}$ est corrigé d'un facteur $\cos^3 \theta$ pour être comparé au modèle.

⁶ Nous mesurons en fait $h_{exp}(\theta) = h_{exp,Anisimov}(\theta) / \cos^3 \theta$ puisque, lors de la mesure, la surface de la sonde est toujours maintenue perpendiculaire à « la normale à la cible planaire ».

V CONCLUSION

Il n'existait pas à notre connaissance de caractérisation, à la fois des électrons et des ions, de plasma généré par laser pour un ensemble de matériaux métalliques, comme nous l'avons présenté dans ce chapitre. En accord avec des études antérieures, nous avons montré que le seuil d'ablation est une propriété qui dépend beaucoup de la nature du matériau considéré. Les autres paramètres caractéristiques du plasma (essentiellement, température électronique et densité ionique) sont peu dépendants de la nature du matériau en jeu. En utilisant une sonde de Langmuir, nous avons pu les déterminer pour des conditions expérimentales variées. Les valeurs de ces paramètres ont été discutées sur la base de considérations physiques simples.

VI RÉFÉRENCES

- 1 **I. Langmuir**, *The effect of space charge and initial velocities on the potential distribution and thermoionic current between parallel plane electrodes*. Phys. Rev., 21(4) (1923) p. 419-435.
- 2 **H.M. Mott-Smith et I. Langmuir**, *The Theory of Collectors in Gaseous Discharges*. Phys. Rev., 28(4) (1926) p. 727-763.
- 3 **I. Langmuir**, *The interaction of electron and positive ion space charges in cathode sheaths*. Phys. Rev., 33(6) (1929) p. 954-989.
- 4 **L. Tonks et I. Langmuir**, *A general theory of the plasma of an arc*. Phys. Rev., 34(6) (1929) p. 876-922.
- 5 **F.F. Chen**, *Introduction to plasma physics and controlled fusion*. Vol.1, Plasma physics (1984) Plenum Press, New York.
- 6 **M.J. Goeckner, J. Goree et T.E. Sheridan**, *Measurements of ion velocity and density in the plasma sheath*. Phys. Fluids B, 4(6) (1992) p. 1663-1670.
- 7 **C.D. Child**, *Discharge from hot CaO*. Phys. Rev. Series I, 32(5) (1911) p. 492-511.
- 8 **G.J.H. Brussaard, M. van der Steen, M. Carrère, M.C.M. van de Sanden et D.C. Schram**, *Langmuir probe measurements in an expanding magnetized plasma*. Phys. Rev. E, 54(2) (1996) p. 1906-1911.
- 9 **M.B. Hopkins et W.G. Graham**, *Langmuir probe technique for plasma parameter measurement in a medium density discharge*. Rev. Sci. Instrum., 57(9) (1986) p. 2210-2217.
- 10 **D.W. Koopman**, *Langmuir probe and microwave measurements of the properties of streaming plasmas generated by focused laser pulses*. Phys. Fluids, 14(8) (1971) p. 1707-1716.
- 11 **S.B. Segall et D.W. Koopman**, *Application of cylindrical Langmuir probes to streaming plasma diagnostics*. Phys. Fluids, 16(7) (1973) p. 1149-1156.
- 12 **N. Hershkowitz**, *How Langmuir probes work*, dans *Plasma diagnostics, Vol. 1 Discharge parameters and chemistry*, O. Auciello et D.L. Flamm, Editors (1989) Academic Press Boston, p. 113-183.

- 13 **J.M. Hendron, C.M.O. Mahony, T. Morrow et W.G. Graham**, *Langmuir probe measurements of plasma parameters in the late stages of a laser ablated plume*. J. Appl. Phys., 81(5) (1997) p. 2131-2134.
- 14 **D.A. Herman et A.D. Gallimore**, *A high-speed probe positioning system for interrogating the discharge plasma of a 30 cm ion thruster*. American Institute of Aeronautics and Astronautics "38th Joint Propulsion Conference and Exhibit" (2002) Indianapolis.
- 15 **T. Onishi**, *Electron current collection by a positively charged tether using a particle-in-cell method*. Master of Sciences, Massachusetts Institute of Technology - Boston (1998).
- 16 **B. Toftmann, J. Schou, T.N. Hansen et J.G. Lunney**, *Angular distribution of electron temperature and density in a laser-ablation plume*. Phys. Rev. Lett., 84(17) (2000) p. 3998-4001.
- 17 **B. Toftmann, J. Schou, T.N. Hansen et J.G. Lunney**, *Evolution of the plasma parameters in the expanding laser ablation plume of silver*. Appl. Surf. Sci., 186 (2002) p. 293-297.
- 18 **I. Weaver, G.W. Martin, W.G. Graham, T. Morrow et C.L.S. Lewis**, *The Langmuir probe as a diagnostic of the electron component within low temperature laser ablated plasma plumes*. Rev. Sci. Instrum., 70(3) (1999) p. 1801-1805.
- 19 **L. Torrisi, G. Ciavola, S. Gammino, L. Andò, A. Barnà, L. Láska et J. Krása**, *Metallic etching by high power Nd:yttrium-aluminum-garnet pulsed laser irradiation*. Rev. Sci. Instrum., 71(11) (2000) p. 4330-4334.
- 20 **S. Amoruso, M. Armenante, R. Bruzzese, N. Spinelli, R. Velotta et X. Wang**, *Emission of prompt electrons during excimer laser ablation of aluminium targets*. Appl. Phys. Lett., 75(1) (1999) p. 7-9.
- 21 **B. Thestrup, B. Toftmann, J. Schou, B. Doggett et J.G. Lunney**, *Ion dynamics in laser ablation plumes from selected metals at 355 nm*. Appl. Surf. Sci., 197-198 (2002) p. 175-180.
- 22 **C.R. Phipps, T.P. Turner, R.F. Harrison, G.W. York, W.Z. Osborne, G.K. Anderson, X.F. Corlis, L.C. Haynes, H.S. Steele, K.C. Spicochi et T.R. King**, *Impulse coupling to targets in vacuum by KrF, HF, and CO₂ single-pulse lasers*. J. Appl. Phys., 64(3) (1988) p. 1083-1096.
- 23 **C.R. Phipps et R.W. Dreyfus**, *Laser ablation and plasma formation (Chap. 4 : The high laser irradiance regime)*, dans *Laser ionization mass analysis*, A. Vertes, R. Gijbels et F. Adams, Editors (1993) John Wiley and Sons New York, p. 369-431.
- 24 **S. Amoruso**, *Modelling of laser produced plasma and time-of-flight experiments in UV laser ablation of aluminium targets*. Appl. Surf. Sci., 138-139 (1999) p. 292-298.
- 25 **O.F.K. Mc Grath**, *Structural and magnetic properties of epitaxial W/Fe/W and Gd/Fe films grown by pulsed laser deposition*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1994).
- 26 **R. Jordan, D. Cole, J.G. Lunney, K. Mackay et D. Givord**, *Pulsed laser ablation of copper*. Appl. Surf. Sci., 86 (1995) p. 24-28.
- 27 **J.J. Chang et B.E. Warner**, *Laser-plasma interaction during visible-laser ablation methods*. Appl. Phys. Lett., 69(4) (1996) p. 473-475.
- 28 **V. Nassisi et A. Pedone**, *Physics of the expanding plasma ejected from a small spot illuminated by an ultraviolet pulsed laser*. Rev. Sci. Instrum., 74(1) (2003) p. 68-72.
- 29 **F. Robaut**, *Élaboration par dépôt laser pulsé et caractérisation de couches minces épitaxiées de métaux de terres rares et de composés intermétalliques terre rare-cobalt*. Thèse, Université Joseph Fourier - Grenoble (1995).

- 30 **L. Torrissi, L. Andò, G. Ciavola, S. Gammino et A. Barnà**, *Angular distribution of ejected atoms from Nd:YAG laser irradiating metals*. Rev. Sci. Instrum., 72(1) (2001) p. 68-72.
- 31 **S.I. Anisimov, D. Bäuerle et B.S. Luk'yanchuk**, *Gas dynamics and film profiles in pulsed-laser deposition of materials*. Phys. Rev. B, 48(16) (1993) p. 12076-12081.
- 32 **P.T. Rumsby et J.W.M. Paul**, *Temperature and density of an expanding laser produced plasma*. Plasma Phys., 16 (1974) p. 247-260.
- 33 **J.G. Lunney**, *Pulsed laser deposition of metal and metal multilayer films*. Appl. Surf. Sci., 86 (1995) p. 79-85.
- 34 **D. Cole, R. Jordan, J.G. Lunney et J.M.D. Coey**, *Pulsed laser deposition of Fe thin films in UHV*. J. Magn. Magn. Mater., 165 (1997) p. 246-249.
- 35 **R. Jordan et J.G. Lunney**, *Investigation of excimer laser ablation of iron*. Appl. Surf. Sci., 127-129 (1998) p. 968-972.
- 36 **S. Amoruso, X. Wang, C. Altucci, C. de Lisio, M. Armenante, R. Bruzzese et R. Velotta**, *Thermal and nonthermal ion emission during high-fluence femtosecond laser ablation of metallic targets*. Appl. Phys. Lett., 77(23) (2000) p. 3728-3730.
- 37 **J. Wild, P. Kudrna, T. Gronych, J. Broz, Z. Zelinger, P. Kubat et S. Civis**, *Langmuir probe measurement of plasma splitting during pulsed laser deposition*. Rev. Sci. Instrum., 72(2) (2001) p. 1597-1599.
- 38 **N. Cherief, D. Givord, O.F.K. Mc Grath, Y. Otani et F. Robaut**, *Laser ablation deposition of metallic films and bilayers (Fe, Rare Earth and RE / Fe bilayers)*. J. Magn. Magn. Mater., 126(1-3) (1993) p. 225-231.
- 39 **G.C. Tyrrell, T. York, N. Cherief, D. Givord, J. Lawler, J.G. Lunney, M. Buckley et I.W. Boyd**, *Kinetic energy and mass distributions of ablated species formed during Pulsed Laser Deposition*. Microelectronic Engineering, 25 (1994) p. 247-252.
- 40 **A. Thum-Jaeger, B.K. Sinha et K.P. Rohr**, *Time of flight measurements on ion-velocity distribution and anisotropy of ion temperatures in laser plasmas*. Phys.Rev. E, 63(1) (2000) p. 016405/1-10.
- 41 **B. Toftmann, J. Schou et J.G. Lunney**, *Dynamics of the plume produced by nanosecond ultraviolet laser ablation of metals*. Phys. Rev. B, 67(10) (2003) p. 104101/1-5.
- 42 **H. Kurz, K. Töglhofer, H.P. Winter, F. Aumayr et R. Mann**, *Electron emission from slow hollow atoms at a clean metal surface*. Phys. Rev. Lett., 69(17) (1992) p. 1140-1143.
- 43 **H. Eder, M. Vana, F. Aumayr et H.P. Winter**, *Precise total electron yield measurements for impact of singly or multiply charged ions on clean solid surfaces*. Rev. Sci. Instrum., 68(1) (1997) p. 165-169.
- 44 **M. Kaminsky**, *Atomic and ionic impact phenomena on metal surfaces*. (1965) Springer, Berlin.
- 45 **S.H. Brongersma, J.C.S. Kools, T.S. Baller, H.C.W. Beijerinck et J. Dieleman**, *Secondary electrons generated by fast neutral bombardment of the growing film during laser ablation deposition*. Appl. Phys. Lett., 59(11) (1991) p. 1311-1313.

CHAPITRE 4 :

ANALYSE DE L'INFLUENCE D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE SUR DES PLASMAS DE DIVERS ÉLÉMENTS

| | | |
|------------|---|------------|
| I | CONFINEMENT PAR LE CHAMP MAGNÉTIQUE | 103 |
| II | CARACTÉRISATION DU PLASMA À PARTIR DU TAUX DE DÉPÔT | 105 |
| II.1 | OBSERVATIONS QUALITATIVES | 105 |
| II.2 | MESURES DU TAUX DE DÉPÔT | 106 |
| II.3 | TAUX DE DÉPÔT | 107 |
| III | CARACTÉRISATION DES PLASMAS PAR SONDE DE LANGMUIR EN MODE TEMPS DE VOL | 109 |
| III.1 | GÉNÉRALITÉS : SONDE DE LANGMUIR ET CHAMP MAGNÉTIQUE | 109 |
| III.2 | MÉCANISME DE COLLECTION SOUS CHAMP MAGNÉTIQUE | 109 |
| III.2.1 | COLLECTION EN TENSION NÉGATIVE | 110 |
| III.2.2 | COLLECTION EN TENSION POSITIVE | 111 |
| III.3 | RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX | 112 |
| III.3.1 | CONDITIONS EXPÉRIMENTALES | 112 |
| III.3.2 | SIGNAUX $I(t)$ ET $I(V_b)$ | 112 |
| III.3.3 | POTENTIEL PLASMA | 120 |
| III.3.4 | COURANT IONIQUE À SATURATION ET DENSITÉS IONIQUES | 121 |
| IV | ANALYSE ET DISCUSSION | 124 |
| IV.1 | DU COURANT IONIQUE DE SATURATION AU TAUX D'ABLATION PAR IMPULSION | 124 |
| IV.2 | POTENTIEL PLASMA | 126 |
| IV.3 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE, ÉNERGIE MOYENNE DES IONS ET TEMPÉRATURE INITIALE DU PLASMA EN CHAMP MAGNÉTIQUE | 126 |
| IV.3.1 | TEMPÉRATURE ÉLECTRONIQUE | 126 |
| IV.3.2 | LIENS ENTRE DENSITÉS DE COURANT EN CHAMP NUL ET SOUS CHAMP MAGNÉTIQUE | 127 |
| IV.3.3 | LIENS ENTRE DENSITÉS DE COURANT EN FONCTION DU TEMPS ET DENSITÉS EN FONCTION DE L'ÉNERGIE | 129 |
| IV.4 | RECOMBINAISON ET FRACTION IONIQUE INITIALE | 132 |
| V | CONCLUSION | 138 |
| VI | RÉFÉRENCES | 138 |

Dans la première partie de ce chapitre, je décris les propriétés des plasmas, observées sous champ magnétique, de façon qualitative, puis quantitativement, sur la base de la mesure des taux de dépôt. Dans la seconde partie, le fonctionnement d'une sonde de Langmuir sous champ très intense est analysé dans le cas particulier des plasmas générés par laser. Dans la dernière partie de ce chapitre, je tente de mettre en relief quel est l'influence spécifique d'un champ magnétique sur les comportements des plasmas générés par laser.

I CONFINEMENT PAR LE CHAMP MAGNÉTIQUE

Le confinement d'un plasma par le champ magnétique est un effet qui résulte de la « force de Lorentz » agissant sur les ions et les électrons qui le constituent. Cette force s'exprime :

$$\vec{F}_\ell = q\vec{v} \wedge \vec{B} = m \frac{d\vec{v}}{dt}, \quad (1)$$

où q est la charge élémentaire de la particule, m sa masse, \vec{v} sa vitesse, et \vec{B} le champ magnétique. La trajectoire hélicoïdale résultante des particules est illustrée sur la Fig. 1 (a). On peut imaginer que chaque particule se déplace à la surface d'un cylindre dont l'axe, z , est parallèle au champ magnétique (Fig. 1 (b)), et dont le rayon, dit « de Larmor », R_L , vaut :

$$R_L \equiv \frac{v_\perp}{\omega_c} = \frac{mv_\perp}{|q|B}, \quad (2)$$

avec ω_c la fréquence cyclotron de la trajectoire et v_\perp la vitesse dans le plan perpendiculaire à B . Les particules sont ainsi piégées dans le champ magnétique. Elles ne peuvent diffuser perpendiculairement au champ magnétique que si elles reçoivent une énergie supplémentaire.

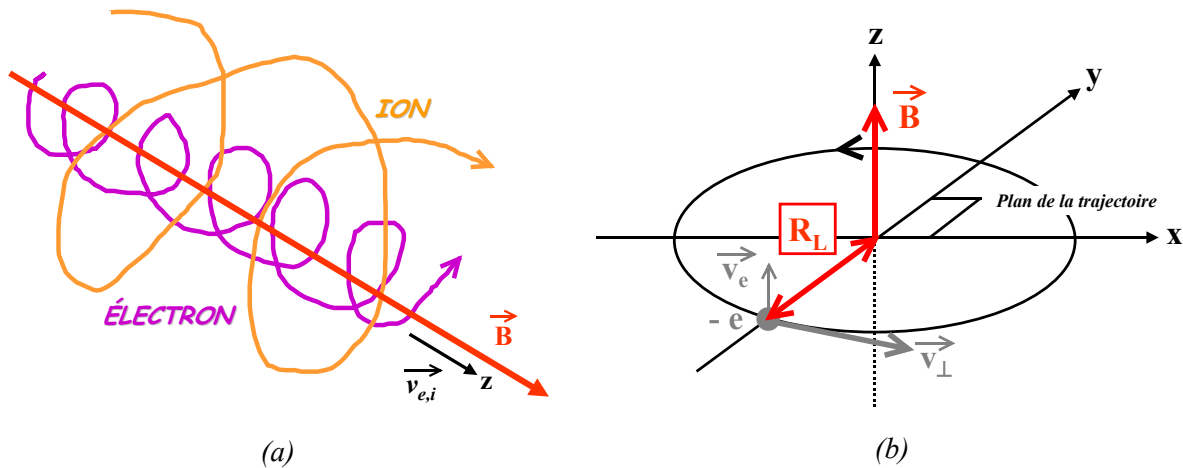


Fig. 1 : (a) Schématisation du mouvement hélicoïdal le long d'une ligne de champ. (b) Orbite circulaire d'une particule de charge négative le long d'une ligne de champ. La rotation s'effectue dans le sens direct. R_L est le rayon de Larmor. Par convention, les sens de rotation sont positif (direct) pour les électrons et négatif (inverse) pour les ions. $v_{e,i}$ est la vitesse d'expansion des espèces.

Du fait des grandes différences de masse et vitesse entre électrons et ions, les effets du champ sur ces 2 types de particules sont quantitativement très différents. Dans un champ de $1 T$ et pour une température électronique de $10^4 K$, le rayon de Larmor des électrons est de $0.5 \mu m$. Pour nos conditions expérimentales, le libre parcours moyen électronique évalué, λ_e , ne varie pas beaucoup pendant l'ensemble du processus d'expansion, il est de l'ordre de 1 à $10 mm$ [1]. Le confinement des électrons par le champ est donc très efficace. Dans le même champ de $1 T$, pour un ion fer dont la vitesse transverse est égale à une valeur typique de $3 \times 10^3 m s^{-1}$, ce rayon vaut $1.7 mm$. Le libre parcours moyen des ions, λ_i , varie typiquement entre $1 mm$ et $1 m$ de la fin de l'impulsion jusqu'au moment du dépôt. Dans le cas présent, on attend donc un confinement significatif par le champ, les chocs avec les atomes de l'environnement ne devant pas entraîner une diffusion significative transversalement au champ. Nous sommes dans des conditions où les électrons et les ions du plasma sont dits « magnétiques ». Une telle configuration n'est pas toujours rencontrée dans les études de plasmas sous champ, qui sont plutôt réalisées sous des champs de l'ordre de $0.1 T$ au maximum, pour lesquels les électrons sont « magnétiques » mais les ions ne le sont pas nécessairement.

Nous avons vu (Chapitre 2 Paragraphe I.2 p. 34) que l'énergie des espèces au sein d'un plasma généré par laser ne dépend, au premier ordre, que de la densité d'énergie incidente. On en déduit que le rayon de Larmor est proportionnel à \sqrt{m} . À titre indicatif, les valeurs du

rayon de Larmor pour les différents éléments étudiés, évaluées dans des champs respectifs de $0.8 T$ et $5 T$, et pour des ions d'énergie cinétique $5 \times 10^{-18} J$ (correspondant à l'énergie d'un ion Fe^+ se déplaçant à une vitesse de $10^4 m s^{-1}$) sont données dans le Tab. 1.

| | Al^+ | Fe^+ | Cu^+ | Mo^+ | Pt^+ |
|------------------------|-------------------|-------------------|-------------------|--------------------|--------------------|
| $v_{\perp} (m s^{-1})$ | 0.5×10^4 | 0.3×10^4 | 0.3×10^4 | 0.25×10^4 | 0.15×10^4 |
| $0.8 T$ | 1.7 mm | 2 mm | 2.5 mm | 3 mm | 4 mm |
| $5 T$ | 0.3 mm | 0.35 mm | 0.4 mm | 0.4 mm | 0.6 mm |

Tab. 1 : Rayon de Larmor, R_L (en mm), sous champ magnétique, de divers ions, pour une énergie cinétique de $5 \times 10^{-18} J$ et en supposant que la vitesse transverse est le 1/3 de la vitesse selon l'axe cible-sonde.

II CARACTÉRISATION DU PLASMA À PARTIR DU TAUX DE DÉPÔT

II.1 Observations qualitatives

Afin de révéler les effets de confinement du plasma, nous avons réalisé une série de dépôts sur de simples films plastiques. La Fig. 2 représente des photos de dépôts de cuivre d'une durée $t_{dep} = 2 min$, effectués à diverses distances cible-substrat, entre 7 et 30 cm. Dès un champ appliqué de $0.1 T$, on note une forte localisation du dépôt, caractéristique du phénomène de confinement du plasma par le champ magnétique. Un rétrécissement anisotrope de la tâche de matière déposée est observé en champs plus intenses. Sous $5 T$, la plus petite dimension correspond à la taille du spot laser sur la cible. Dans un champ donné, on remarque que la taille de la tâche diminue lorsque la distance cible-substrat augmente. Dans un phénomène d'expansion classique, la surface de la tâche devrait augmenter proportionnellement à la distance.

Les dépôts ont une forme étoilée caractéristique, dont nous n'avons pas compris l'origine. Nous la relierions à des hétérogénéités du faisceau laser incident, et donc de l'ablation, plutôt qu'à des hétérogénéités du champ magnétique.

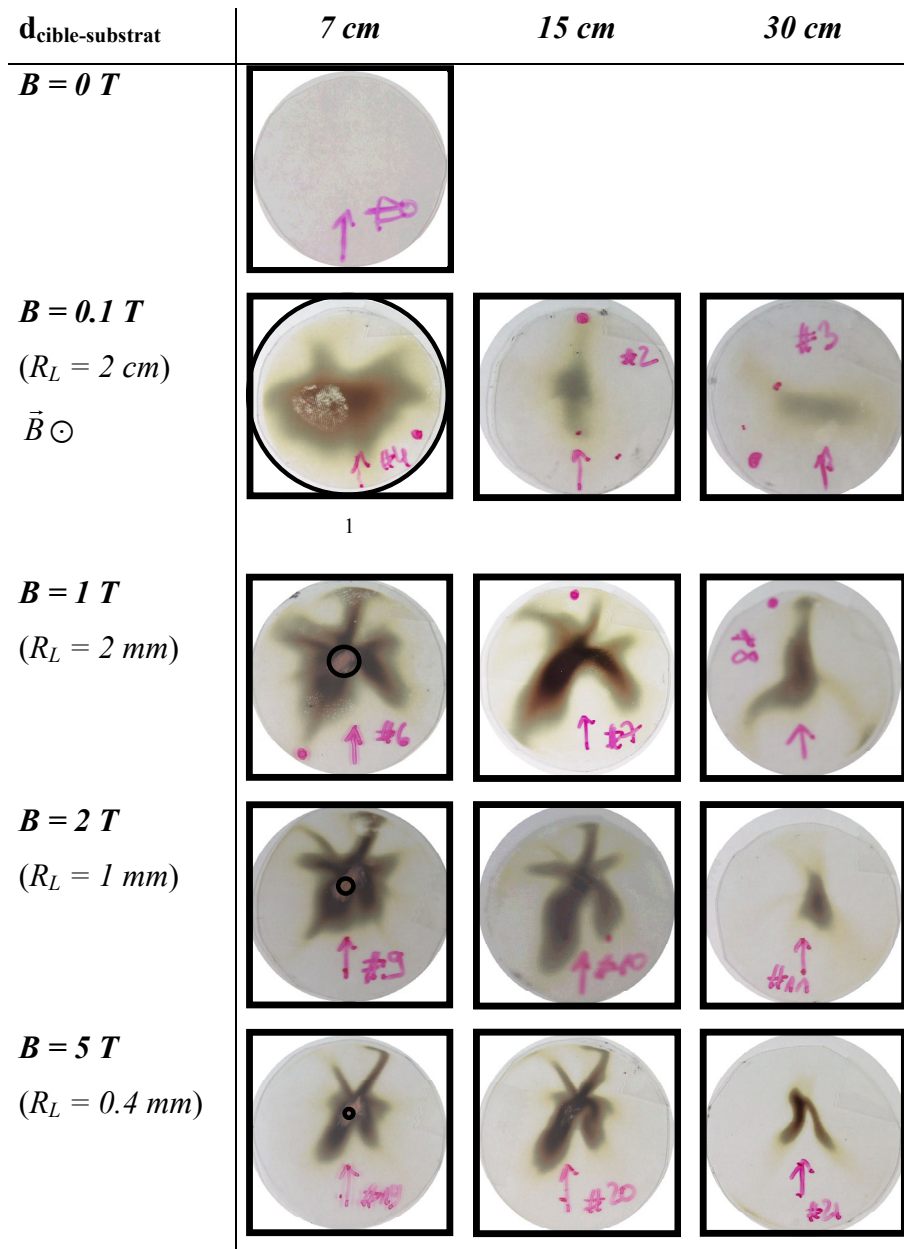


Fig. 2 : Dépôts de cuivre réalisés sur des substrat // en simple plastique de $\phi \approx 35 mm$. $t_{\text{dep}} = 2 min$, $F = 1 J cm^{-2}$, $\phi_s \approx 3 mm$, $\vec{B} \perp$ au plan du substrat et de la cible. Le cercle continu représente le rayon de Larmor. Notez la grande différence de concentration du dépôt entre $B = 0 T$ et $B = 0.1 T$.

II.2 Mesures du taux de dépôt

Pour ces expériences, la cible a été positionnée de la même façon que lors des mesures en champ nul. Nous avons utilisé 2 types de substrats, qui ont été disposés de façon à collecter la totalité des espèces évaporées (l'arrangement expérimental est schématisé sur la Fig. 3). Le

¹ Ce n'est qu'une empreinte de doigt !!!

premier substrat, dit « substrat // », est un clinquant de cuivre de $\phi \approx 35 \text{ mm}$ et de $300 \mu\text{m}$ d'épaisseur, il est positionné parallèlement à la surface de la cible, comme il est usuel. Sa faible épaisseur a été choisie en vue de déduire par pesée la quantité de matière déposée. Le second substrat, dit « substrat \perp », est une feuille d'aluminium de $12 \mu\text{m}$ d'épaisseur, de diamètre $\phi \approx 35 \text{ mm}$ et longueur $l = d_{\text{cible-substrat}}$. Cette feuille forme un cylindre qui ferme totalement le volume au sein duquel les espèces évaporées se détendent. La quantité totale de matière évaporée lors de chaque expérience a été mesurée par pesée du clinquant de cuivre et de la feuille d'aluminium avant et après dépôt. Dans quelques cas, nous avons vérifié que la quantité obtenue était égale à la perte de poids de la cible, elle aussi obtenue par pesée.

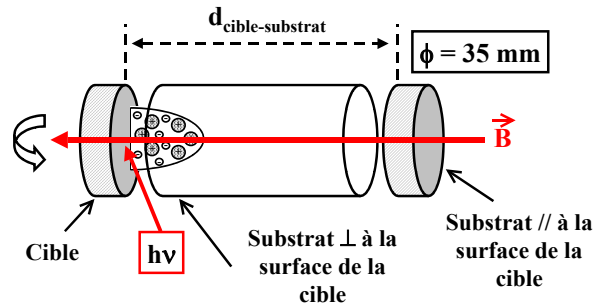


Fig. 3 : Schéma représentant la disposition de la cible et des substrats.

II.3 Taux de dépôt

Les mesures ont été réalisées avec des plasmas d'aluminium, cuivre et molybdène, pour des densités d'énergie sur la cible de $1, 2.5$ et 5 J cm^{-2} . Des distances cible-substrat de $7, 15$ et 30 cm ont été considérées et les temps de dépôt correspondant, t_{dep} , étaient de $75, 135$ et 180 min . Ces temps ont été choisis afin que la masse totale déposée soit supérieure à 10^{-3} g . Les fluctuations de lecture de la balance étaient de l'ordre de 10^{-4} g et l'erreur sur la pesée meilleure que 20% dans toutes les conditions.

Les variations des taux de dépôt, en g s^{-1} , en fonction du champ magnétique sont présentées, pour une distance cible-substrat de 7 cm , sur la Fig. 4. L'effet du confinement par le champ se manifeste dès les champs les plus faibles, avec une très forte augmentation du dépôt sur les substrats // et une diminution du dépôt sur les substrats \perp . Sous 1 T , le taux de dépôt, sur les substrats //, est d'un facteur 10 fois supérieur à celui observé en champ nul. L'augmentation du taux de dépôt au-delà de 1 T est modeste, en accord avec les photos, présentées sur la Fig. 2, sur lesquelles les tâches de dépôt sont de dimensions nettement inférieures à celles du substrat. Cependant, du fait de la diminution continue de la surface de la tâche lorsque B augmente (voir les photos, Fig. 2), le taux de dépôt ramené à cette surface continue à augmenter. Sous 5 T , considérant que la surface de la tâche déposée est de 2 cm^2 , le taux de dépôt est de $3 \mu\text{m min}^{-1}$.

Les taux de dépôt normalisés, respectivement sur le substrat ($N_{//} \equiv \text{substrat } //$) et en-dehors du substrat ($N_{\perp} \equiv \text{substrat } \perp$) sont représentés sur la Fig. 5 pour différentes distances cible-substrat ($N_{//} + N_{\perp} = I \equiv N_{\text{tot}}$, le taux d'ablation total). Cette figure illustre la diminution de l'angle solide au sein duquel la plume de matière évaporée se propage, lorsque le champ magnétique augmente.

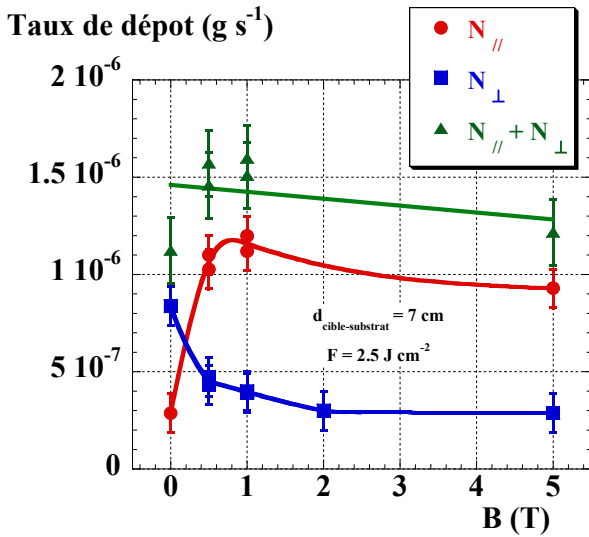


Fig. 4 : Taux de dépôt sur les substrats $//$ et \perp et taux de dépôt total (g s^{-1}), en fonction de B , d'un plasma de cuivre. $F = 2.5 \text{ J cm}^{-2}$ et $d_{\text{cible-substrat}} = 7 \text{ cm}$. La fréquence de répétition du laser, F_{rep} , est de 10 Hz.

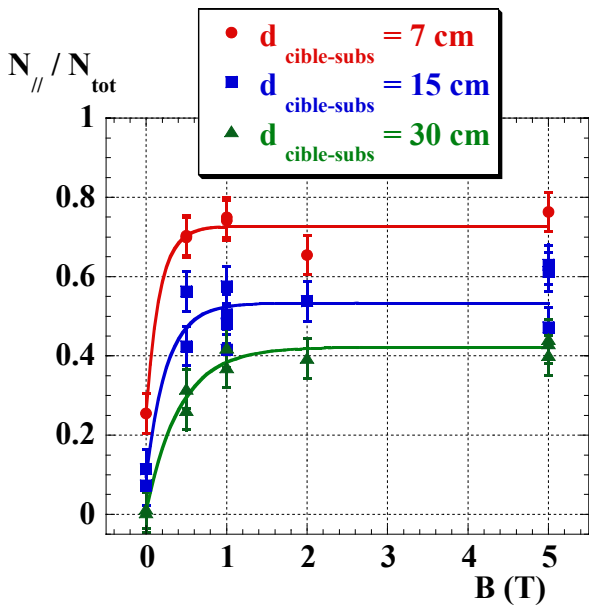


Fig. 5 : Taux de dépôt normalisé en fonction de B d'un plasma de cuivre, à plusieurs distances cible-substrat. $F = 2.5 \text{ J cm}^{-2}$. Les lignes donnent seulement l'évolution générale des distributions.

III CARACTÉRISATION DES PLASMAS PAR SONDE DE LANGMUIR EN MODE TEMPS DE VOL

III.1 Généralités : sonde de Langmuir et champ magnétique

Le comportement d'une sonde de Langmuir est profondément altéré par l'application d'un champ magnétique. En effet, les lignes de champs magnétiques engendrent une diminution de la diffusion des particules chargées du plasma transversalement aux lignes de champ. Le coefficient de diffusion normal, D , est donné par la théorie cinétique et vaut : $D = \lambda \bar{v} / 3$. Le coefficient de diffusion perpendiculaire, D_{\perp} , s'écrit :

$$D_{\perp} = \frac{D}{1 + (\lambda/R_L)^2} \propto \frac{D}{B^2}, \quad (3)$$

où λ est le libre parcours moyen des espèces et R_L le rayon de Larmor. Alors que D est proportionnel à λ , à champ magnétique fixe, D_{\perp} , est proportionnel à $1/\lambda$. En effet la diffusion perpendiculairement aux lignes de champ ne peut se faire qu'à travers la diffusion sur les autres particules de l'environnement. Dans la littérature, on distingue des régimes différents de collection, selon l'intensité du champ magnétique [2]. Dans le régime de champ dit très intense, les dimensions de la sonde sont supérieures aux rayons de Larmor $R_{L,electron}$ et $R_{L,ion}$. Cette situation se rencontre particulièrement dans des plasmas de fusion [3] [4] [5]. Elle s'applique aux espèces constitutifs des plasmas que nous avons étudiés, particulièrement aux électrons, en raison des champs magnétiques très intenses mis en jeu.

III.2 Mécanisme de collection sous champ magnétique

Deux phénomènes essentiels doivent être pris en compte pour interpréter les signaux que nous avons obtenus sous champ magnétique avec la sonde de Langmuir. Le premier est caractéristique de ce type de mesures : la diffusion des espèces, tout particulièrement celle des électrons, est considérablement réduite sous champ magnétique. Le second est particulier au type de plasma que nous analysons : ses dimensions transversales sont de l'ordre de grandeur de celles de la sonde de Langmuir ; de ce fait, les charges collectées sur la sonde représentent une fraction significative du nombre total de charges au sein du plasma.

Afin de mettre en relief le type de comportements observés, une courbe $I(V_b)$ d'un plasma de platine au temps de vol $t = 10 \mu s$, et dans un champ de $5 T$, est présentée sur la

Fig. 6. Cette courbe a été déduite des signaux $I(t)$, selon la même procédure qu'au chapitre précédent.

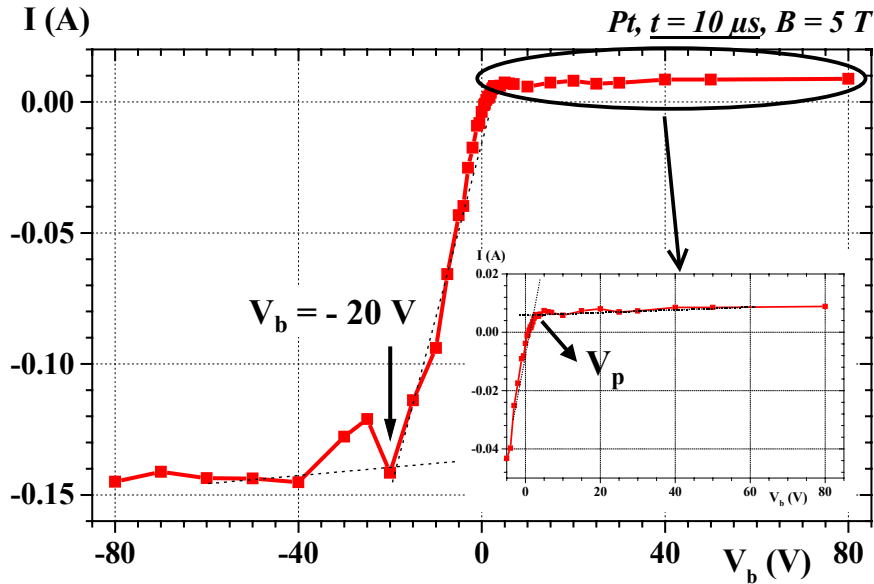


Fig. 6 : Caractéristique $I-V_b$ du plasma de platine pour un temps de vol de $10 \mu s$. En insert, un zoom sur la région $V_b > 0$. $B = 5 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$ et $M = 100 \mu s$.

III.2.1 Collection en tension négative

En champ magnétique nul, la variation de courant en fonction d'une tension appliquée, faiblement négative par rapport au potentiel plasma, donne accès à la valeur de la température électronique. Si l'on applique, sous champ, le même type d'analyse qu'en champ nul, la réduction concomitante de la pente $d(\ln I)/dV_b$ conduit à une valeur irréaliment forte de la température électronique. En effet, des tensions négatives bien plus intenses qu'en champ nul sont requises pour atteindre le courant ionique à saturation. Notre compréhension de ce phénomène est la suivante. Les électrons qui arrivent au voisinage de la sonde sont repoussés au sein du plasma et tendent à rejoindre des trajectoires qui évitent la sonde. Le coefficient de diffusion le long des lignes de champ est identique au coefficient en champ nul, il vaut $D_e = 1/3 \times \lambda_e v_e \approx 10^2 m^2 s^{-1}$ ($\lambda_e \approx 3 mm$, $v_e \approx 10^5 m s^{-1}$). Sous un champ de $1 T$, le coefficient de diffusion perpendiculaire, $D_{e\perp}$, est inférieur à D_e d'un facteur $(\lambda_e/R_{Le})^2 \approx 3 \times 10^7$ (voir Paragraphe III.1 p. 109). Sur un temps de $50 \mu s$, de l'ordre de la durée totale du temps de vol cible-sonde, la distance de diffusion perpendiculaire aux lignes de champ est de l'ordre de

$10 \mu m$. Cette distance est négligeable devant les dimensions transversales de la sonde, de l'ordre de $4 mm$. Nous avons alors supposé que les électrons du plasma peuvent intervenir dans 3 types de mécanismes : **(1)** ils peuvent remonter les tubes de flux jusqu'à la cible, **(2)** ils peuvent se recombinaison avec les ions, **(3)** ils peuvent être piégés au sein du plasma, source d'une charge d'espace locale dont le champ électrique s'oppose à celui de la sonde, de telle sorte que des électrons peuvent en fin de compte atteindre celle-ci. Les phénomènes **(2)** et **(3)** sont sources d'une réduction du courant de la sonde comme observé expérimentalement. Au-delà de $-20V$ sur la Fig. 6, on atteint finalement le courant ionique à saturation, ce qui suggère que, sous l'effet de la tension de plus en plus forte appliquée à la sonde, le phénomène **(1)** supplante les phénomènes **(2)** et **(3)**.

III.2.2 Collection en tension positive

Dès que la tension appliquée à la sonde est supérieure au potentiel plasma, les électrons sont attirés vers la sonde. Comme en champ nul, les ions ne peuvent être freinés du fait de leur grande énergie cinétique. Le courant collecté devrait donc être nul. Sur la Fig. 6, on note un changement brusque dans la variation de $I(V_b)$ que l'on est donc amené à associer au potentiel plasma. V_p est de $+3 V$. À des valeurs supérieures de la tension, le courant mesuré n'est pas strictement nul, mais faiblement positif ($\approx 0.01 A$). Nous n'avons pas exploité la valeur du courant résiduel alors mesuré et n'avons donc pas cherché à comprendre précisément par quel mécanisme des ions échappent à la sonde.

Au-delà d'une tension positive appliquée à la sonde, $V_b > mv_i^2/2e$, les ions doivent être repoussés de la sonde au sein du plasma comme les électrons le sont sous tension négative. Dans le cas du platine, et au temps de $10 \mu s$ présenté sur la Fig. 6, la tension correspondante est de $100 V$, elle est supérieure aux tensions appliquées expérimentalement et aucune anomalie n'est donc attendue. Cependant, des tensions suffisantes pour repousser les ions ont été appliquées dans certaines conditions expérimentales (voir, par exemple, *Fe* sous $5 T$ pour un temps de vol de $20 \mu s$, ce qui correspond à un potentiel de $7 V$ -Fig. 11 (d) p. 117-). Or, aucun changement de comportement n'a alors été observé. Ce résultat indique que les ions, du fait de leur masse qui est bien supérieure à celle des électrons, ne remontent pas les tubes de flux comme nous avons suggéré que les électrons devaient le faire. On peut alors penser que les ions piégés au sein du plasma finissent par se recombinaison aux électrons environnants, en accord avec le fait qu'aucun courant n'est détecté.

III.3 Résultats expérimentaux

III.3.1 Conditions expérimentales

Le dispositif expérimental de sonde de Langmuir, décrit dans le Chapitre 3 (p. 63), est schématisé dans son ensemble sur la Fig. 7. Le champ magnétique est colinéaire à la direction d'expansion des espèces. Les paramètres expérimentaux essentiels sont identiques à ceux utilisés en champ magnétique nul. Ils sont résumés dans le Tab. 2.

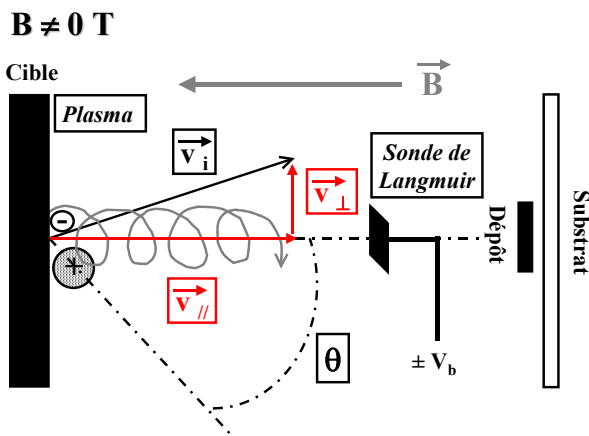


Fig. 7 : Géométrie du système. Les détails expérimentaux de la chambre de dépôt sont décrits dans le Chapitre 1, l'arrangement expérimental de la sonde de Langmuir dans le Paragraphe II du Chapitre 3 (p. 63).

| | Al | Cu | Mo | Fe | Pt |
|------------------------|----|-------------|----|-------------|----|
| $F (J cm^{-2})$ | | 1 - 2.5 - 5 | | 0.9 | |
| $d_{cible-sonde} (cm)$ | | 7 - 15 | | 10 | |
| $V_b (V)$ | | + 30 à - 30 | | + 80 à - 80 | |
| $M (\mu s)$ | | 40 - 100 | | 100 | |
| $B (T)$ | | 1 - 5 | | 0.8 - 5 | |

Tab. 2 : Conditions expérimentales de caractérisation des différents plasmas étudiés. F représente la densité d'énergie, $d_{cible-sonde}$ la distance entre la cible et la sonde, V_b la polarisation de la sonde, M la période totale d'acquisition du signal et B l'induction magnétique.

III.3.2 Signaux $I(t)$ et $I(V_b)$

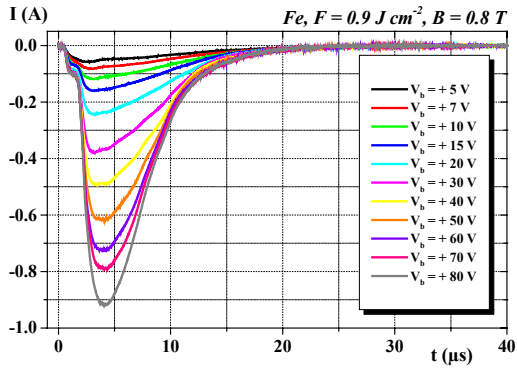
Les signaux $I(t)$ mesurés pour un plasma de *fer*, sous des champs de 0.8 T et 5 T, sont présentés sur les Fig. 8 et Fig. 9 (p. 114). Les graphes (a) et (b) correspondent à $V_b > 0$ et les graphes (c) à $V_b < 0$.

En $V_b = 0$, le signal est négatif aux temps très courts ($\approx 2\mu s$), il devient positif vers $5\mu s$ puis s'annule aux temps supérieurs à $10\mu s$. Ce comportement démontre qu'aux très grandes énergies cinétiques, il existe une séparation en vitesse entre électrons et ions.

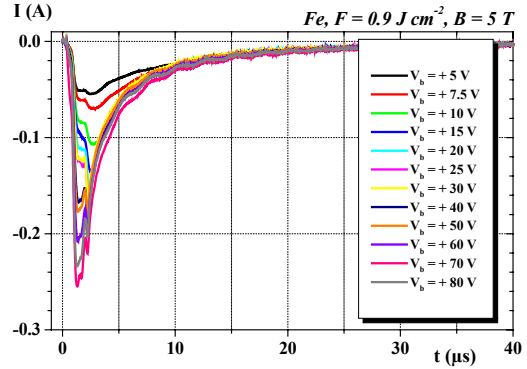
Pour $V_b > 0$, la contribution des électrons au courant détecté augmente progressivement avec V_b . Les signaux sont inférieurs à ceux mesurés en champ magnétique nul. Les courants mesurés sous $5 T$ sont inférieurs à ceux mesurés sous $0.8 T$ et ils sont décalés vers les temps les plus courts.

Pour $V_b < 0$, le signal de caractère ionique augmente très rapidement avec l'amplitude de la tension. Sa valeur maximale est atteinte à $t = 6\mu s$. Elle est supérieure à $0.5 A$ sous $0.8 T$. Sous $5 T$, les signaux tendent à être décalés vers les temps les plus longs ; le courant maximal, à $6\mu s$, approche $1 A$. Ces courants sont de presque 2 ordres de grandeur supérieurs à ceux mesurés en champ nul.

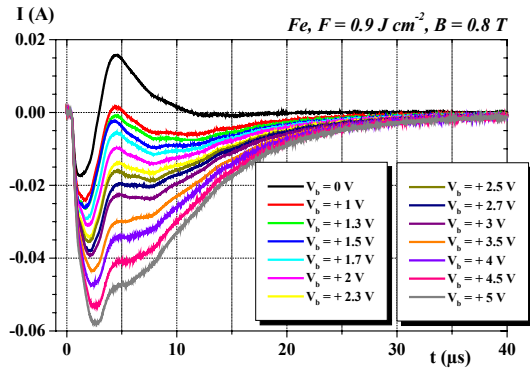
Analyse de l'Influence d'un Champ Magnétique sur des Plasmas de Divers Éléments



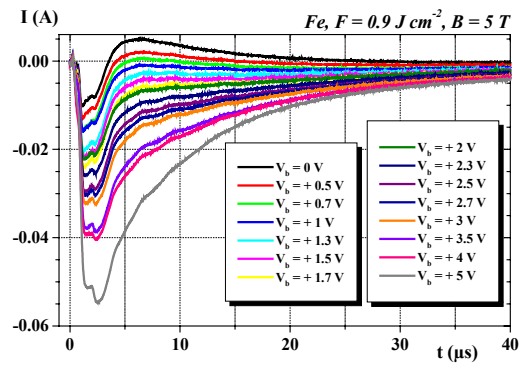
(a)



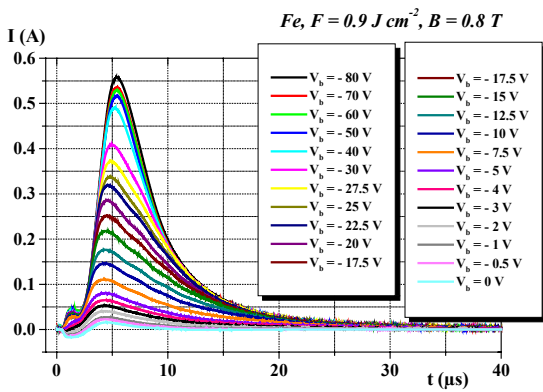
(a)



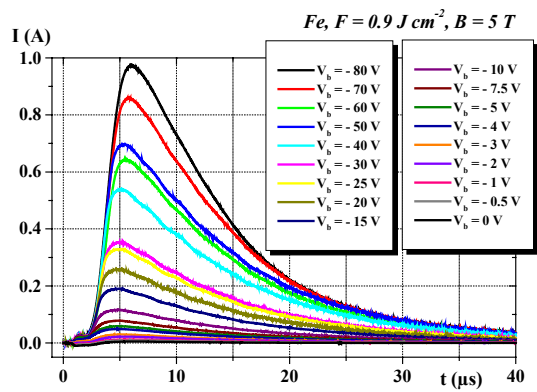
(b)



(b)



(c)



(c)

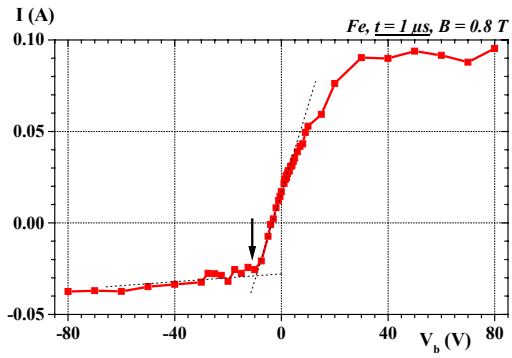
Fig. 8 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de fer pour V_b variant de $+80 V$ à $-80 V$. $B = 0.8 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$ et $M = 100 \mu s$.

Fig. 9 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de fer pour V_b variant de $+80 V$ à $-80 V$. $B = 5 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$ et $M = 100 \mu s$.

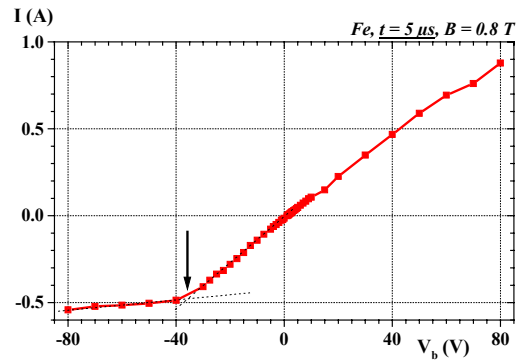
Les variations du courant en fonction de la tension appliquée à la sonde, déduites des courbes $I(t)$ ci-dessus, à des temps caractéristiques de $1 \mu s$, $5 \mu s$, $10 \mu s$ et $20 \mu s$, sont présentés sur les Fig. 10 p. 116 ($0.8 T$) et Fig. 11 p. 117 ($5 T$). Ces courbes sont qualitativement en accord avec la description que nous avons faite au Paragraphe III.2 (p. 109). On note les points spécifiques suivants :

- ♦ À $1 \mu s$, un courant significatif est détecté en tension positive, en accord avec l'observation que les électrons et les ions arrivent à des temps différents sur la sonde. Nous n'avons pas compris les mécanismes par lesquels ce courant dépend de la tension. Une fois encore, le signal alors mesuré n'a, en tout état de cause, pas été exploité.

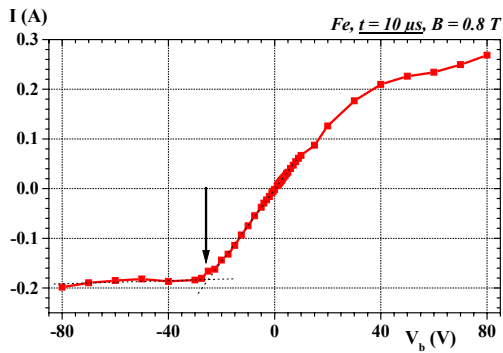
- ♦ En tension négative, il n'est pas toujours possible d'atteindre le courant ionique à saturation. L'observation de l'ensemble des données expérimentales révèle que la tension requise pour atteindre la saturation du courant ionique, augmente avec la densité du plasma (représentée par la valeur du courant ionique à saturation). Sous un champ appliqué de $0.8 T$, la densité est moindre que sous $5 T$ et la saturation est toujours atteinte. Sous $5 T$, elle est atteinte aux temps les plus courts et les plus longs, mais pas au voisinage du pic du signal.



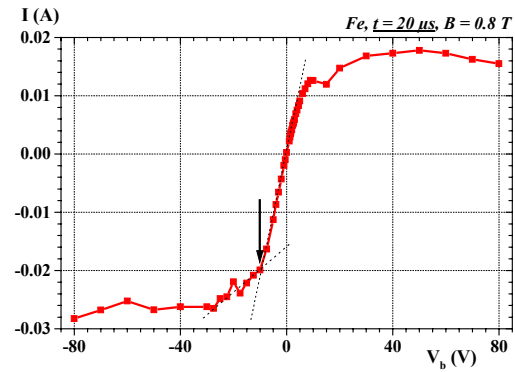
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 10 : $I(V_b)$ pour le plasma Fe, à des temps de vol de (a) $1 \mu s$, (b) $5 \mu s$ ($V_{eq} = 116 V$), (c) $10 \mu s$ ($V_{eq} = 30 V$) et (d) $20 \mu s$ ($V_{eq} = 7 V$). $\underline{B = 0.8 T}$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$.

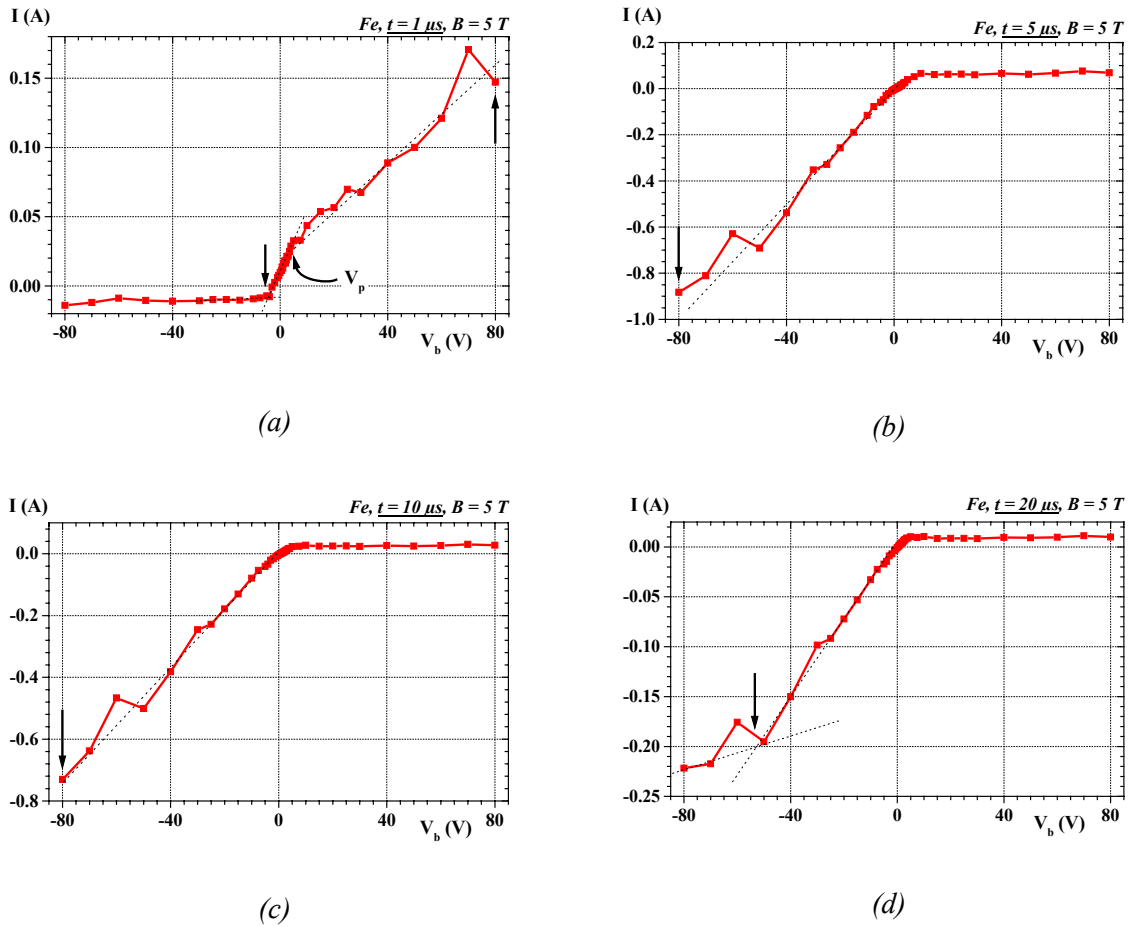
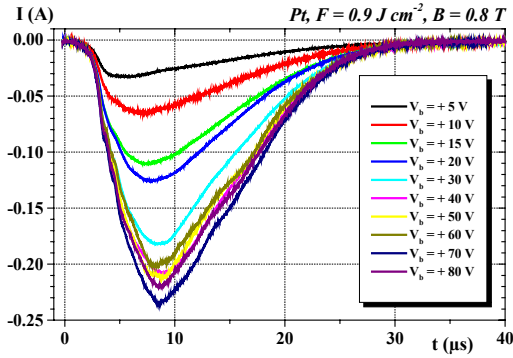


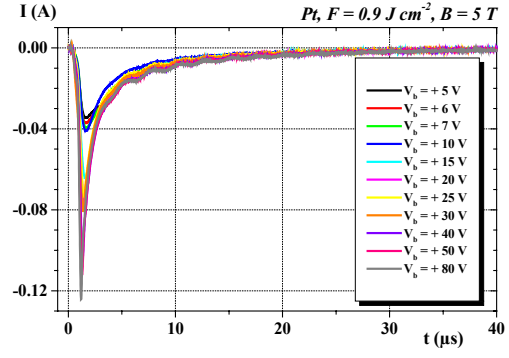
Fig. 11 : $I(V_b)$ pour le plasma Fe , à des temps de vol de (a) $1 \mu s$, (b) $5 \mu s$ ($V_{eq} = 116 V$), (c) $10 \mu s$ ($V_{eq} = 30 V$) et (d) $20 \mu s$ ($V_{eq} = 7 V$). $B = 5 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$.

Platine :

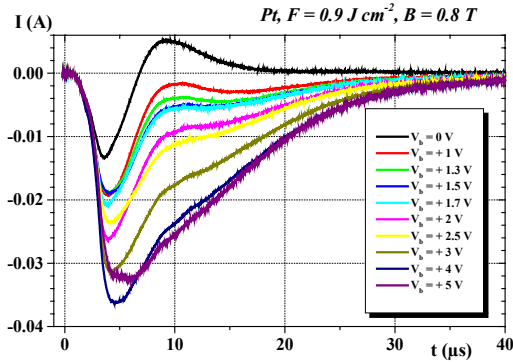
Les mêmes mesures de temps de vol qu'avec le fer, ont été réalisées avec le platine. Les courbes $I(t)$ sont présentées sur les Fig. 12 ($0.8 T$) et Fig. 13 ($5 T$), les courbes $I(V_b)$ correspondantes sur les Fig. 14 p. 119 ($0.8 T$) et Fig. 15 p. 120 ($5 T$). Qualitativement, elles sont similaires aux courbes correspondantes obtenues avec Fe . Dans toutes les conditions expérimentales, la saturation du courant ionique est atteinte. On peut rapprocher cette observation du fait que le platine étant plus réfractaire que le fer, les densités ioniques mesurées sont inférieures à celle obtenues avec Fe .



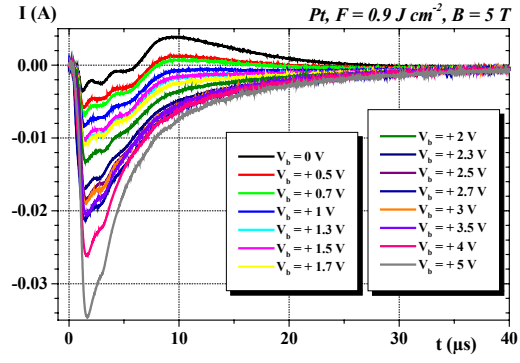
(a)



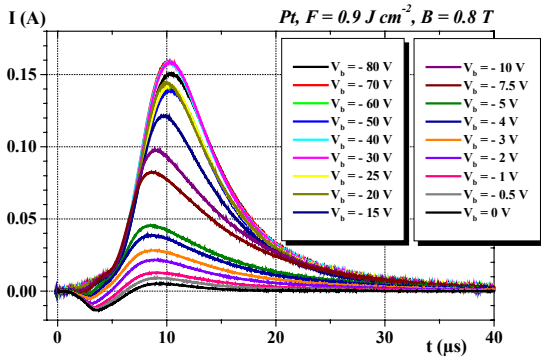
(a)



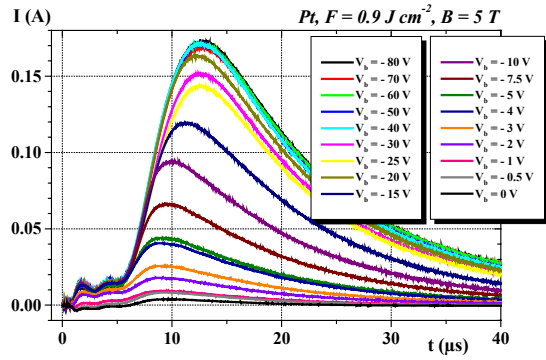
(b)



(b)



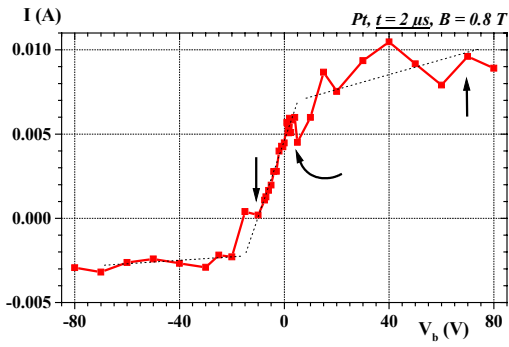
(c)



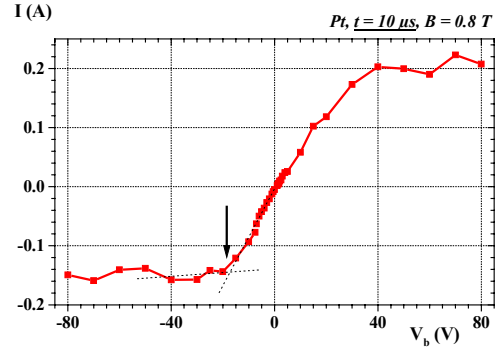
(c)

Fig. 12 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de platine pour V_b variant de + 80 V à - 80 V. $B = 0.8 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$ et $M = 100 \mu s$.

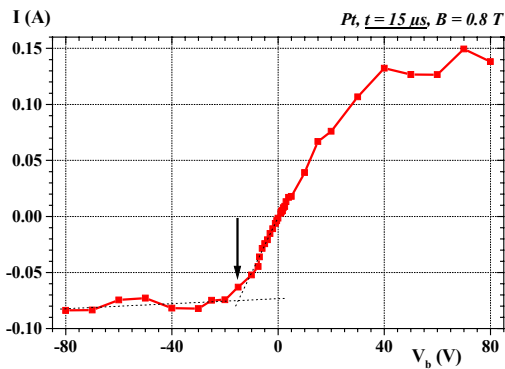
Fig. 13 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de platine pour V_b variant de + 80 V à - 80 V. $B = 5 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$ et $M = 100 \mu s$.



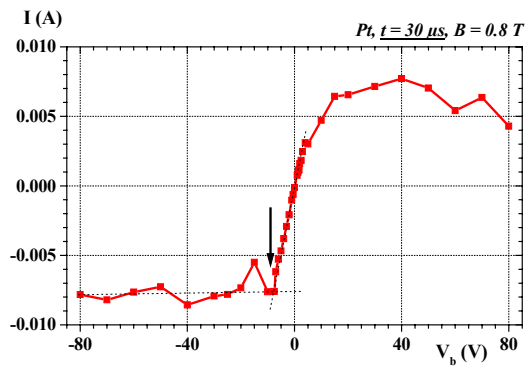
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 14 : $I(V_b)$ pour le plasma Pt, à des temps de vol de (a) $2 \mu s$, (b) $10 \mu s$ ($V_{eq} = 100 V$), (c) $15 \mu s$ ($V_{eq} = 45 V$) et (d) $30 \mu s$ ($V_{eq} = 11 V$). $B = 0.8 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$.

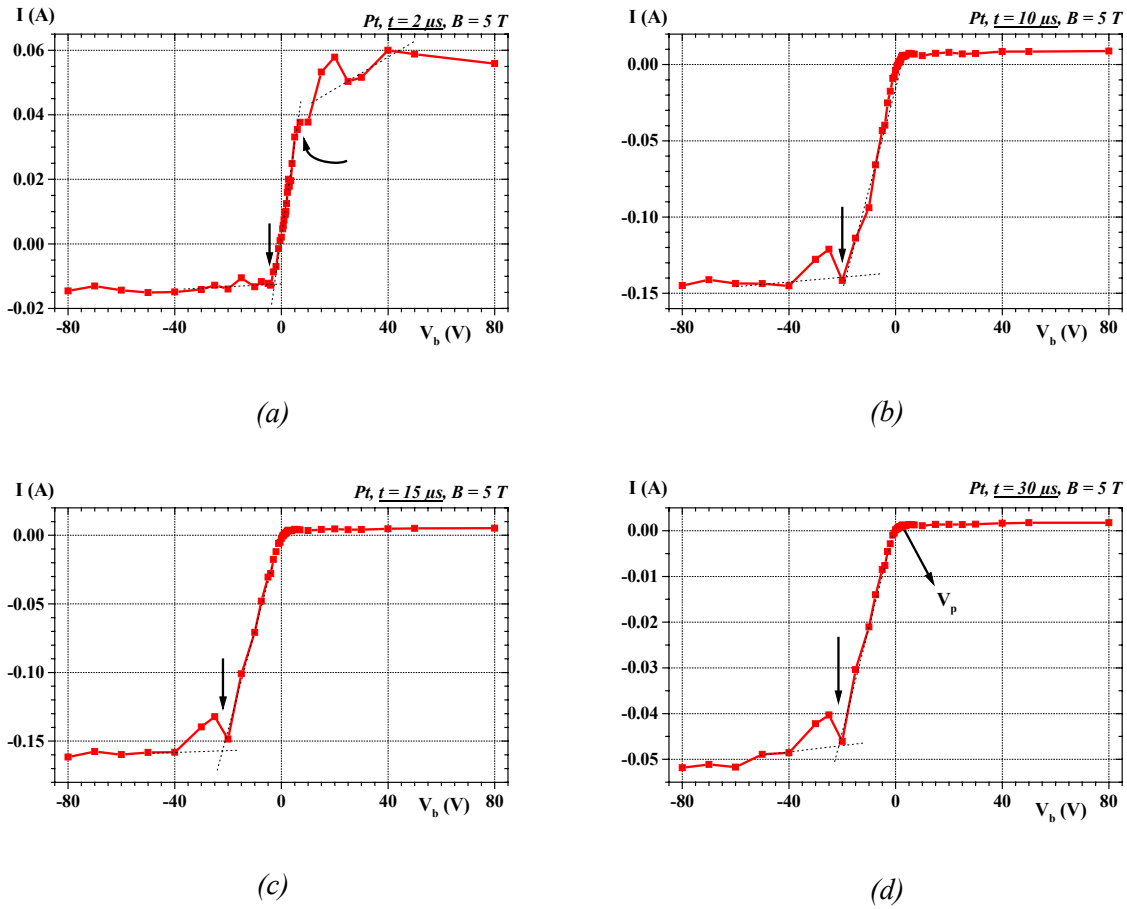


Fig. 15 : $I(V_b)$ pour le plasma Pt, à des temps de vol de (a) $2\ \mu\text{s}$, (b) $10\ \mu\text{s}$ ($V_{eq} = 100\text{ V}$), (c) $15\ \mu\text{s}$ ($V_{eq} = 45\text{ V}$) et (d) $30\ \mu\text{s}$ ($V_{eq} = 11\text{ V}$). $B = 5\text{ T}$, $F = 0.9\text{ J cm}^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10\text{ cm}$.

III.3.3 Potentiel plasma

Le potentiel plasma, V_p , déduit des mesures ci-dessus pour Fe et Pt , est présentée sur la Fig. 16. Dans les deux systèmes, V_p est à peu près constant, de l'ordre de $+3$ à $+4\text{ V}$.

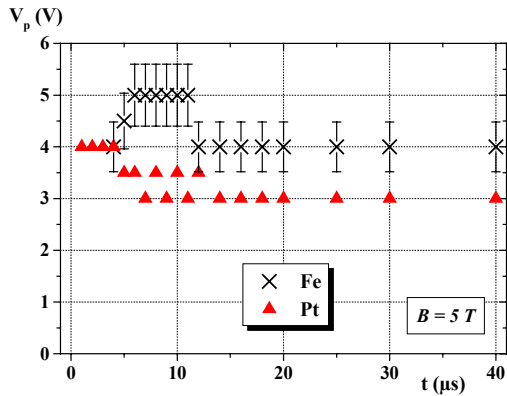


Fig. 16 : Potentiel plasma, en fonction du temps de vol, des plasmas Fe et Pt. $B = 5 T$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$.

III.3.4 Courant ionique à saturation et densités ioniques

La Fig. 17 montre $I_{i,sat}(t)$ pour Pt sous un champ magnétique de $0.8 T$ et $5 T$. Le courant ionique à saturation du plasma Fe sous un champ de $0.8 T$ est présenté sur la Fig. 18.

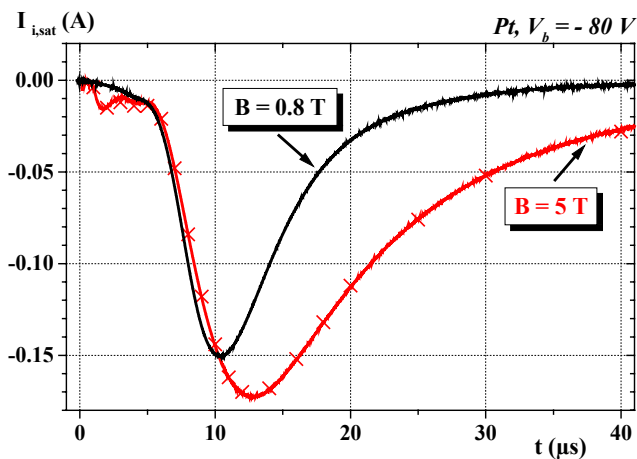


Fig. 17 : $I_{i,sat}$, en fonction du temps de vol, selon le champ magnétique appliqué, du plasma Pt. $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$. Les croix représente $I_{i,sat}$ déterminé à partir des courbes $I(V_b)$, c'est pourquoi il est négatif (convention). Les courbes expérimentales (lignes) proviennent des mesures directes de temps de vol (normalisées par -1) à $V_b = -80 V$.

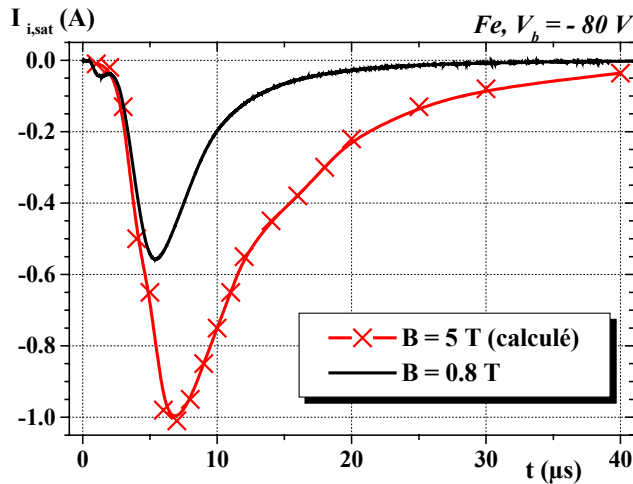


Fig. 18 : Courant ionique à saturation, en fonction du temps de vol, selon le champ magnétique appliqué, du plasma Fe. $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$ et $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$. La courbe expérimentale (0.8 T) provient des mesures directes de temps de vol (normalisées par -1) à $V_b = -80 \text{ V}$. $I_{i,\text{sat}}$ à 5 T est déterminé à partir de celui du platine à 5 T.

Nous avons noté, en champ magnétique nul, que l'énergie des espèces dépendaient peu de leur masse atomique. Les intensités ioniques, $I_{i,\text{sat}}(t)$, normalisées, mesurées sous 0.8 T avec Fe et Pt sont présentées sur la Fig. 19 en fonction de $t/\sqrt{M_{\text{at}}}$. Elles sont similaires, ce qui montre que cette propriété reste vraie sous champ appliqué. En nous fondant sur elle, $I_{i,\text{sat}}$ de Fe (Fig. 18) a été déduit de $I_{i,\text{sat}}$ de Pt dans la zone où, sous 5 T, le courant ionique à saturation de Fe n'a pas été atteint (Fig. 20).

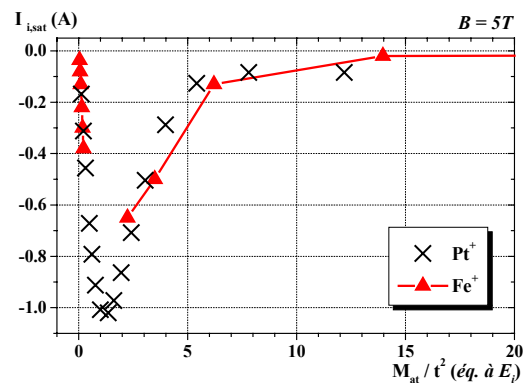
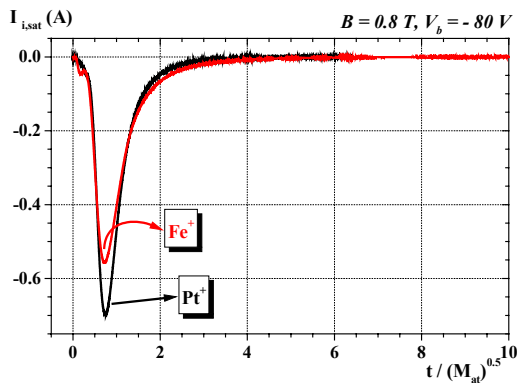


Fig. 19 : Intensités ioniques à saturation du fer et du platine, normalisées, mesurées sous 0.8 T ($V_b = -80 \text{ V}$) en fonction de $t/\sqrt{M_{\text{at}}}$.

Fig. 20 : Comparaison des intensités ioniques à saturation du fer et du platine, normalisées, sous 5 T ($V_b = -80 \text{ V}$) en fonction de M_{at}/t^2 .

$I_{i,sat}$ donne directement accès à la densité des ions au sein du plasma, n_i . Les densités obtenues pour *Fe* et *Pt* sont tracées sur la Fig. 21 en fonction du temps de vol, aux diverses valeurs du champ magnétique appliqué. Les densités normalisées sont présentées sur la Fig. 22. Sous $0.8 T$, on remarque le décalage vers les temps les plus courts (hautes énergies) des signaux mesurés par rapport à ceux mesurés sous $5 T$. La sonde, dont la surface sous $0.8 T$ représente de l'ordre de 10% de celle du substrat et qui est centrée sur l'axe d'expansion reçoit une fraction particulière des ions, celle la plus proche de l'axe. Les espèces non mesurées sont les plus éloignées de l'axe cible-sonde, dont on sait que l'énergie est inférieure à l'énergie moyenne de l'ensemble des ions.

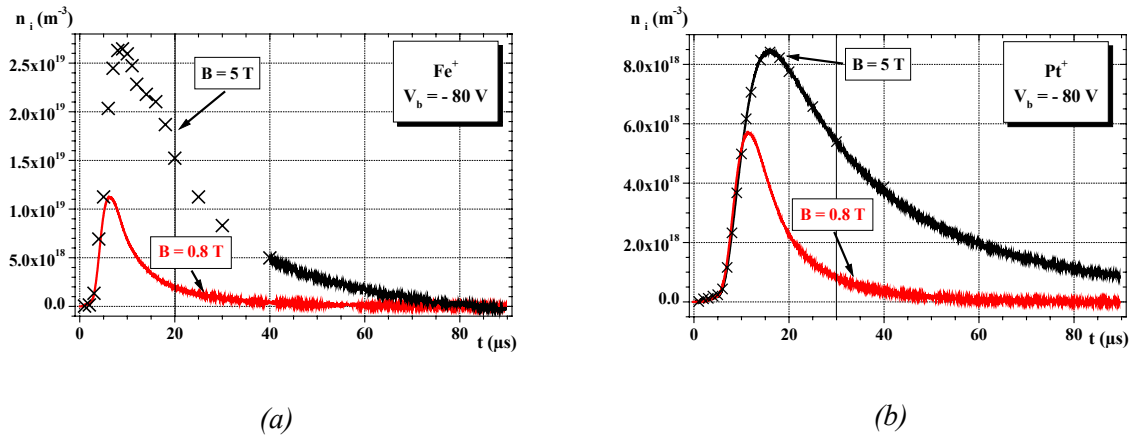


Fig. 21 : Densités ioniques (m^{-3}) des plasmas (a) *Fe* et (b) *Pt*, générés sous champ magnétique ($0.8 T$ et $5 T$). $V_b = -80 V$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$. Les croix représentent une densité déterminée par extrapolation des courbes $I(V_b)$. Notez la proportion importante d'ions sous $5 T$ après $t = 20 \mu s$ pour *Fe* et $t = 30 \mu s$ pour *Pt*. À comparer avec $n_i(t)$ à $B = 0 T$ (Chapitre 3 Fig. 15 p. 79).

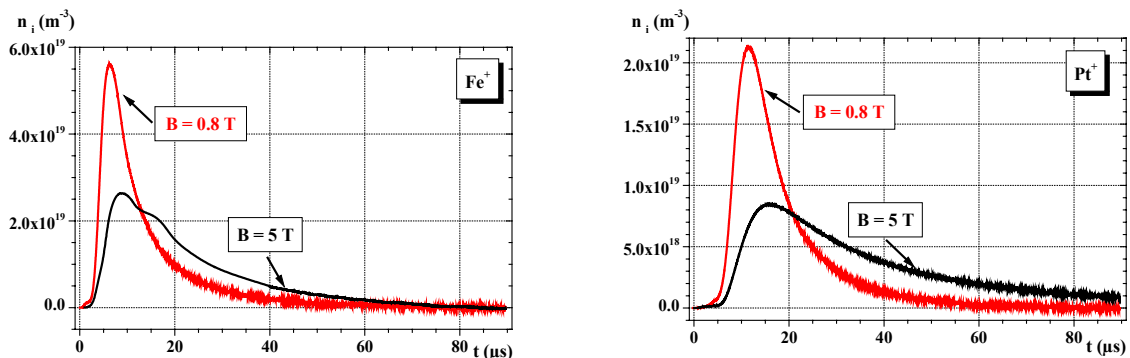


Fig. 22 : Même chose que les figures ci-dessus mais les courbes à $0.8 T$ sont normalisées en surface sur celles de $5 T$.

IV ANALYSE ET DISCUSSION

IV.1 Du courant ionique de saturation au taux d'ablation par impulsion

Le nombre d'ions, N_i , arrivant par seconde sur la sonde vaut $N_i = F_{rep} \int_t (I_{i,sat} / e) dt$, où l'intégration est faite sur le temps de l'impulsion et F_{rep} représente la fréquence de répétition de laser. Le taux de dépôt, τ_d , en $g s^{-1}$, est déduit de :

$$\tau_d = \frac{N_i(t) M_{at}}{N_{av}}, \quad (4)$$

où M_{at} est la masse atomique, N_{av} le nombre d'Avogadro. N_i et τ_d , obtenus pour *Fe* et *Pt*, sont reportés dans le Tab. 3 et sur les Fig. 23 et Fig. 24. Les mêmes paramètres déduits des mesures de pesées avec *Al*, *Cu* et *Mo* apparaissent aussi dans ce tableau et sur ces figures. La décroissance du taux de dépôt lorsque le caractère réfractaire de l'élément évaporé augmente est mise de nouveau en évidence, de la même manière qu'en champ nul (Chapitre 3 Fig. 25 p. 87) et en accord avec un article déjà cité (Chapitre 2 Fig. 7 p. 44 d'après [6]). On remarque en revanche que le taux de dépôt par gramme de matière évaporée est pratiquement constant. C'est un résultat partiellement accidentel, mais qui est tout de même lié au fait que les éléments métalliques les plus lourds du tableau périodique sont souvent les plus réfractaires.

La surface de dépôt sur les films plastiques de la Fig. 2 (p. 106) est estimée à $2 cm^2$. La sonde, de surface $0.18 cm^2$, intercepte environ 10 % de cette surface. Les taux de dépôt instantanés, τ_{di} , en $g s^{-1}$, ont été évalués en multipliant par 10 les taux déduits du signal de la sonde :

$$\tau_{di} = \frac{10 M_{at} \int_t I_{i,sat} dt}{e N_{av} \tau}, \quad (5)$$

où $\tau = 6 ns$ est la durée d'une impulsion laser. Ces taux sont reportés dans le Tab. 3 et sur la Fig. 24. Ils sont de l'ordre de grandeur de ceux reportés par Toftmann *et al.* [7], 100 à 1000 fois inférieurs aux taux déduits de l'expression (3) du Chapitre 2. Cette expression (3) (p. 36) est valide dans le régime de très forte irradiation (voir Chapitre 3 Tab. 3 p. 77), et nous avons déjà noté au Chapitre 3, qu'au taux d'ablation utilisés dans nos expériences, elle ne s'applique pas. Remarquons tout de même que pour une densité d'énergie de $5 J cm^{-2}$, les taux d'ablation instantanés déduit des mesures de pesée (Tab. 3 ci-contre) se rapprochent de ceux

prédits par la relation (3) du Chapitre 2 (Tab. 3 p. 77) : ils ne sont que 10 fois inférieurs à ceux calculés.

| $F \approx 1 \text{ J cm}^{-2}$ | <i>Fe</i> | <i>Pt</i> | <i>Al</i> | <i>Cu</i> | <i>Mo</i> |
|-----------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| N_i (ions / s) | 7.5×10^{14} | 2.3×10^{14} | 17×10^{14} | 7.2×10^{14} | 1.8×10^{14} |
| τ_d (g s^{-1}) | 7×10^{-8} | 7×10^{-8} | 7.6×10^{-8} | 7.6×10^{-8} | 2.9×10^{-8} |
| τ_{di} (g s^{-1}) | 12 | 12 | 12.5 | 12.5 | 5 |
| $F = 5 \text{ J cm}^{-2}$ | <i>Fe</i> | <i>Pt</i> | <i>Al</i> | <i>Cu</i> | <i>Mo</i> |
| τ_{di} (g s^{-1}) | - | - | 260 | 300 | 260 |

Tab. 3 : Nombre d'ions par seconde et taux de dépôt moyen et instantané des différents plasmas sous $B = 5 \text{ T}$, déduits des mesures de temps de vol pour *Fe* et *Pt* ($d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$) (*Fe*, *Pt*) et des pesées pour *Al*, *Cu* et *Mo* ($d_{\text{cible-substrat}} = 7 \text{ cm}$).

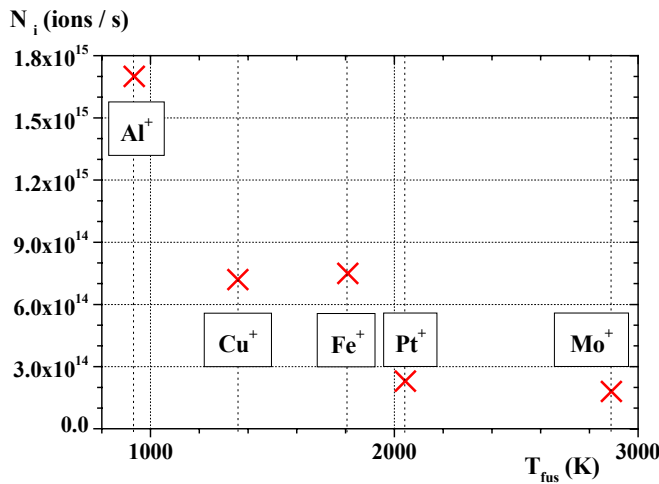


Fig. 23 : Nombre d'ions par seconde en fonction de la température de fusion des métaux. $F \approx 1 \text{ J cm}^{-2}$. $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$ pour *Fe* et *Pt* et $d_{\text{cible-substrat}} = 7 \text{ cm}$ pour *Al*, *Cu* et *Mo*.

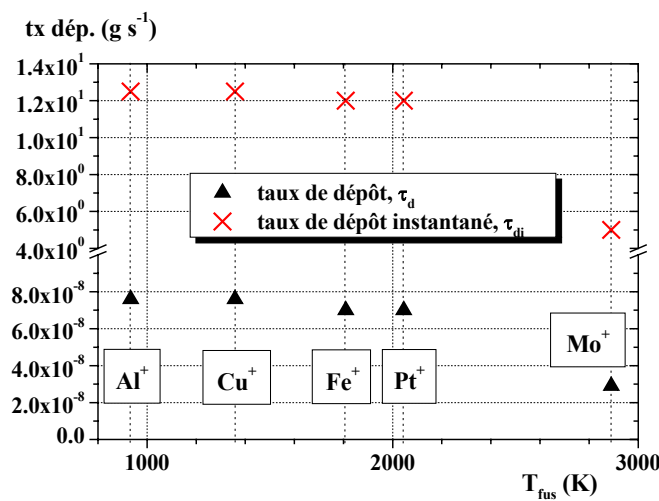


Fig. 24 : Taux de dépôt moyen et taux de dépôt instantané en fonction de la température de fusion. $F \approx 1 \text{ J cm}^{-2}$. $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$ pour *Fe* et *Pt* et $d_{\text{cible-substrat}} = 7 \text{ cm}$ pour *Al*, *Cu* et *Mo*.

IV.2 Potentiel plasma

Les caractéristiques $I(V_b)$ ont permis de déterminer un potentiel plasma, V_p , de $+3 V$ et $+4 V$ (respectivement *Pt* et *Fe*, voir Fig. 16 p. 121). Ces valeurs sont supérieures à celles reportés dans la littérature, en champ magnétique nul. Hendron *et al.* ont obtenu par exemple, $V_p = 0.3 - 1.2 V$ (pour un plasma *Cu* tel que $F = 2.5 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 2 - 4 cm$ et $n_e = 10^{18} m^{-3}$ [8]). Ces différences dans la valeur des potentiels plasma peuvent être liées aux densités de plasmas plus importante obtenues sous champ magnétique ($> 10^{19} m^{-3}$ par rapport à $10^{18} m^{-3}$ en champ magnétique nul, voir paragraphe suivant). En effet, on peut supposer que la charge totale du plasma, Q , est une constante, pour une irradiation donnée. Le potentiel doit varier comme Q/D où D est une dimension caractéristique du plasma. Plus le plasma est concentré, plus fort doit être le potentiel.

IV.3 Température électronique, énergie moyenne des ions et température initiale du plasma en champ magnétique

IV.3.1 Température électronique

La difficulté à expulser les électrons des tubes de flux magnétiques rend difficile l'évaluation de la température électronique sous champ magnétique. Aux seuls temps courts, lorsque les électrons et les ions sont séparés par leurs différences de temps de vol, nous avons supposé que l'analyse utilisée en champ nul pouvait s'appliquer (voir Chapitre 3). Les valeurs de T_e alors obtenues sont rassemblées dans le Tab. 4 ainsi que les densités électroniques associées. Ces mêmes valeurs sont reportées sur la Fig. 25. Elles sont comprises entre $5 \times 10^3 K$ et $10^4 K$, supérieurs d'un facteur 2 - 5 aux températures mesurées en champ nul.

Au Chapitre 3, nous avons relié la température électronique en champ nul à la densité du plasma à travers la relation :

$$T_e = n_i^{\gamma-1}. \quad (6)$$

Pour une densité initiale de $10^{26} ions m^{-3}$ et une valeur de $\gamma = 1.2$, identiques à celle obtenue en champ nul, ainsi qu'une température initiale de $10^5 K$ (voir Paragraphe IV.3.3 p. 130) et une densité caractéristique mesurée sur la sonde de $2 \times 10^{19} ions m^{-3}$ (voir Paragraphe III.3.4 p. 121), la température électronique déduite est de $0.4 \times 10^4 K$. Elle est compatible avec les valeurs du Tab. 4. À la densité supérieure du plasma sous champ correspond une température

électronique légèrement supérieure à celles déduites au Chapitre 3. Cette augmentation de la température électronique n'est cependant pas très importante. En effet, l'essentiel de l'expansion se fait selon la direction du champ magnétique et n'est pas perturbé par celui-ci.

| $B = 5 \text{ T}$ | Fe | | Pt | |
|-------------------|----------------|----------------------|----------------|----------------------|
| $t (\mu\text{s})$ | $k_B T_e (eV)$ | $n_i (m^{-3})$ | $k_B T_e (eV)$ | $n_i (m^{-3})$ |
| 1 | 0.55 | 3.5×10^{16} | - | - |
| 2 | 0.4 | 1.4×10^{17} | 1 | 1.0×10^{17} |
| 3 | - | - | 0.8 | 1.2×10^{17} |
| 4 | - | - | 0.7 | 1.9×10^{17} |
| 5 | - | - | 1 | 2.4×10^{17} |

Tab. 4 : Température électroniques, déduites des courbes $I(V_b)$ au voisinage de V_p , et densité ioniques n_i , déterminé à partir de $I_{i,sat}$, des plasmas de fer et platine, aux courts temps de vol et sous un champ magnétique de 5 T.

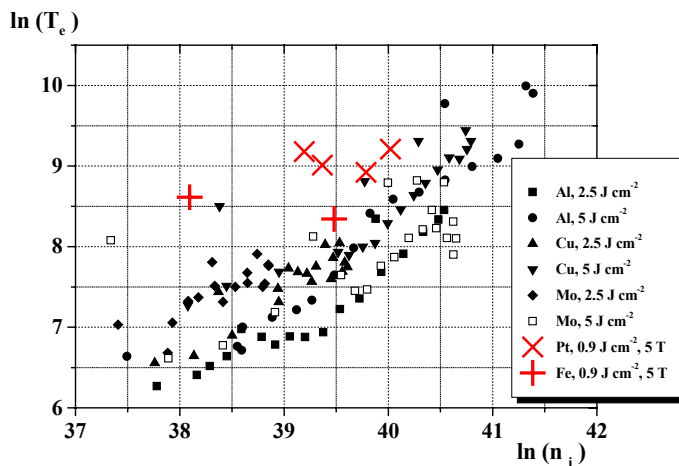


Fig. 25 : $\ln(T_e) = f(\ln(n_i))$ des plasmas Fe et Pt générés sous $B = 5 \text{ T}$ (croix), superposé aux valeurs obtenues en champ magnétique nul.

IV.3.2 Liens entre densités de courant en champ nul et sous champ magnétique

Sous champ magnétique, la sonde collecte l'ensemble des particules qui, en champ nul, sont distribuées dans l'angle solide d'expansion. Considérons, l'angle particulier d'expansion θ , la densité de courant mesurée en champ nul à cet angle est :

$$j_{\theta}(t) = n_{\theta}(t)ev_{\theta}(t), \quad (7)$$

où $n_{\theta}(t)$ est la densité volumique de particules à l'angle θ et au temps t et $v_{\theta}(t)$ la vitesse correspondante des particules. Sous champ magnétique, les mêmes particules contribuent à la densité de courant $j_{\theta,H}(t)$ qui vaut :

$$j_{\theta,H}(t) = n_{\theta,H}(t)ev_{\theta,H}(t), \quad (8)$$

où $n_{\theta,H}(t)$ et $v_{\theta,H}(t)$ sont les densités volumiques et vitesses des particules vues par la sonde sous champ magnétique. À une distance fixe de la cible, les mêmes particules qui en champ nul sont détectées au temps t avec la vitesse $v_{\theta}(t)$, sont détectées au temps $t' = t / \cos \theta$ sous champ magnétique, avec la vitesse apparente $v_{\theta,H}(t') = v_{\theta}(t) \cos \theta$. Il est donc pratique pour le calcul de faire une correspondance entre les temps t en champ nul et t' sous champ magnétique. En vue de comparer $n_{\theta,H}(t')$ et $n_{\theta}(t)$, nous remarquons d'abord que, en raison de la différence des vitesses en champ nul et sous champ, ces deux densités au même temps t , sont reliées par :

$$n_{\theta,H}(t) = n_{\theta}(t) / \cos \theta. \quad (9)$$

Considérant que $n_{\theta,H}(t') / n_{\theta,H}(t) = t / t'$, on en déduit :

$$n_{\theta,H}(t') = n_{\theta}(t). \quad (10)$$

Des diverses relations ci-dessus, on déduit la densité de courant en champ magnétique intégrée sur tous les angles, $j_H(t')$:

$$j_H(t') = \int_{\theta} j_{\theta}(t' = t / \cos \theta) \cos \theta \sin \theta d\theta. \quad (11)$$

(On vérifie que $j_{\theta,H}(t')dt' = j_{\theta}(t)dt$; nous aurions pu arriver directement à l'expression (11) en utilisant cette relation fondamentale des fonctions de distribution).

Nous avons utilisé les courbes $j_{\theta}(t)$ expérimentales obtenues à 4 angles particuliers avec le plasma Cu , pour tracer des courbes phénoménologiques $j_{\theta}(t')$. La densité de courant $j_H(t')$ alors obtenue par intégration est tracée sur la Fig. 26. En l'absence de données expérimentales sous champ caractérisant un plasma Cu , la densité de courant $j_H(t')$ a été comparée à celle obtenue avec Fe , élément dont la masse atomique est proche de celle de Cu .

Les 2 courbes sont extrêmement similaires, elles se distinguent des courbes $I(t)$ en champ nul par une augmentation importante du signal aux temps de vol de l'ordre de $20 \mu s$. À ce temps, le signal sous champ représente 20 % du signal maximal, il n'en représente que 3 % en champ nul. Cette augmentation du signal a deux causes : d'une part, la diminution de l'énergie des espèces lorsque l'angle θ augmente, d'autre part le fait que la vitesse mesurée selon l'axe du champ est la projection de la vitesse vraie à l'angle θ .

L'accord entre la variation temporelle expérimentale, sous champ, du courant ionique à saturation et la variation de ce courant calculée à partir des données expérimentales en champ nul, implique que le mécanisme d'expansion n'est pas profondément influencé par le champ. La similitude des valeurs de T_e , obtenues sous champ en en champ nul, nous a amené au paragraphe précédent à la même conclusion.

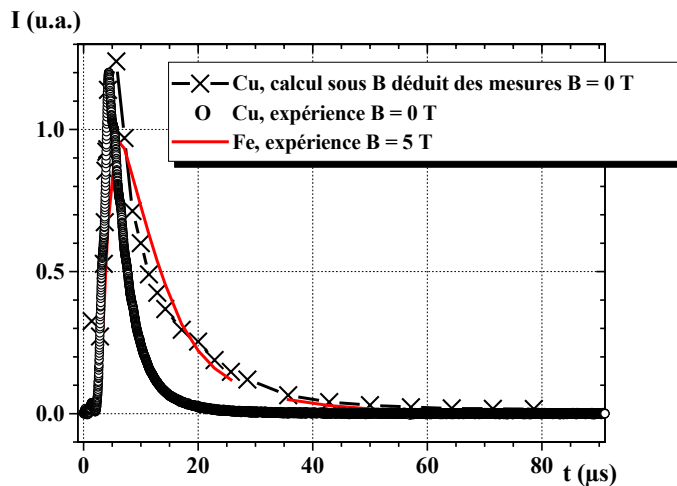


Fig. 26 : Comparaison des distributions de courant mesurées sous champ et en champ nul ; ainsi que calculées, sous 5 T, à partir des mesures en champ nul.

Rayon de Larmor :

Les mesures de la variation angulaire du signal en champ nul, $j_\theta(t)$, nous donnent accès, lors des mesures sous champ magnétique, à la vitesse transverse à \vec{B} . Pour θ et t donnés, celle-ci s'exprime, sur la base de la relation (7) :

$$v_{\perp,\theta} = \frac{j_\theta(t)}{n_\theta(t)e} \sin \theta. \quad (12)$$

Toutes les espèces qui se déplacent avec une même vitesse selon l'axe cible-sonde (c'est à dire qui arrivent sur la sonde à un même temps t'), se trouvent dans la même région du plasma. Au début de l'expansion, les densités sont de l'ordre ou supérieures à $10^{26} m^{-3}$ et les

libres parcours moyens ions-ions et ions-atomes sont inférieurs au *mm* (voir Chapitre 2). Nous pouvons donc supposer qu'à travers les collisions correspondantes, la composante transverse de l'énergie cinétique est redistribuée entre tous les ions d'une région du plasma. La vitesse quadratique moyenne, au temps t' , intégrée sur tous les angles, s'exprime donc :

$$\langle v_{\perp}(t') \rangle = \int_{\theta} v_{\theta}^2(t') \sin^3 \theta d\theta, \quad (13)$$

et la vitesse quadratique intégrée sur les temps est :

$$\langle v_{\perp}^2 \rangle = \frac{1}{t'} \int_{t'} v_{\perp}^2(t'). \quad (14)$$

La racine carrée de $\langle v_{\perp}^2 \rangle$ vaut $0.38 \times \langle v_i \rangle$, la vitesse moyenne selon l'axe d'expansion. Dans le cas de *Cu*, elle est de l'ordre de $0.34 \times 10^4 \text{ m s}^{-1}$. Le rayon de Larmor calculé varie de 2 cm sous 0.1 T à 0.4 mm sous 5 T (R_L représenté sur les photos de la Fig. 2 p. 106).

Du point de vue expérimental, le champ magnétique bloque l'expansion tridimensionnelle du plasma. Dans un tel cas, la taille du dépôt sur le substrat dépend de 2 paramètres : la taille du spot laser sur la cible et la valeur du rayon de Larmor. Le plus grand des deux doit être déterminant. Sous 0.1 T , c'est le cercle de Larmor, en champs plus intenses, c'est la taille du spot. Sous $1 - 2 \text{ T}$, la tâche observée correspond approximativement à la taille du spot laser. Sous 0.1 T , la tâche paraît plus petite que le cercle de Larmor, sous 5 T , elle paraît plus petite que le spot laser. Dans ces deux cas, le dépôt est peu épais : sous 0.1 T , parce que le confinement par le champ n'est pas très important, sous 5 T sans doute en raison de phénomènes de recombinaison associés à la forte densité du plasma dans ce cas (voir Paragraphe IV.4 p. 132). Lorsque les dépôts sont peu épais, le rayon apparent peut être plus petit que le rayon réel du fait que l'absorption varie exponentiellement avec l'épaisseur de la couche.

IV.3.3 Liens entre densités de courant en fonction du temps et densités en fonction de l'énergie

En champ nul, les énergies cinétiques des ions ont été simplement déduites de la mesure de leurs temps de vol. Nous avons appliqué la même approche sous champ magnétique, ce qui revient à négliger le terme d'énergie transverse. Celle-ci représente 15% en moyenne de l'énergie, comme nous venons de le montrer ci-dessus.

Les courbes de temps de vol $I_{i,sat}(t)$ du courant ionique de saturation, transformées en courbe $I_{i,sat}(E)$ en fonction de l'énergie cinétique, E_i , sont présentées pour $0.8 T$ et $5 T$ sur la Fig. 27. La Fig. 28 compare les distributions énergétiques du fer et du platine sous un même champ, et la Fig. 29 compare les distributions énergétiques sous $0 T$ et sous $5 T$. On remarque la proportion non négligeable d'ions d'énergie $< 10 eV$ sous un champ magnétique de $5 T$ (Fig. 29). C'est une autre manifestation de la différence entre les énergies des espèces collectées sous $0.8 T$ et $5 T$ respectivement. Les énergies moyennes déduites de la Fig. 27 sont rassemblées dans le Tab. 5.

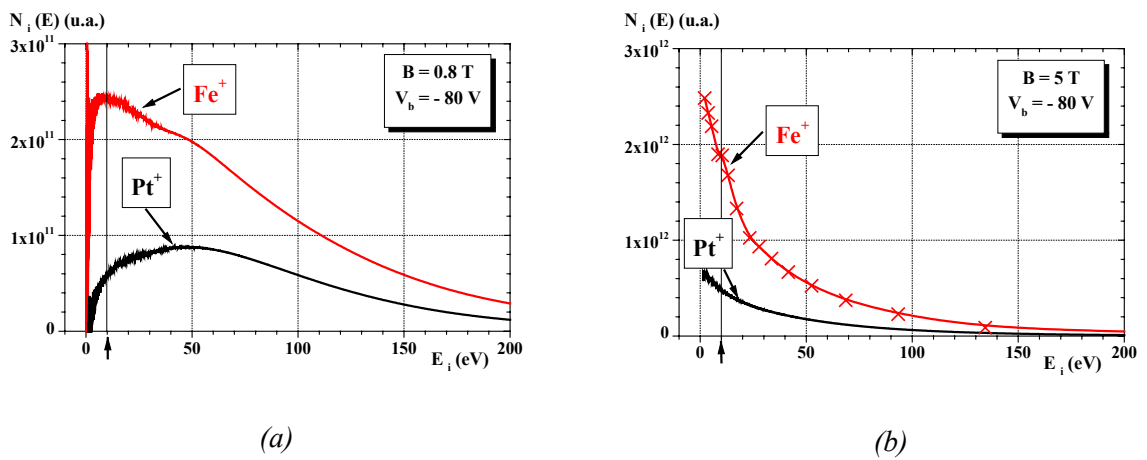


Fig. 27 : Distribution énergétique de Fe^+ et Pt^+ pour $V_b = -80 V$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$. (a) $B = 0.8 T$ et (b) $B = 5 T$.

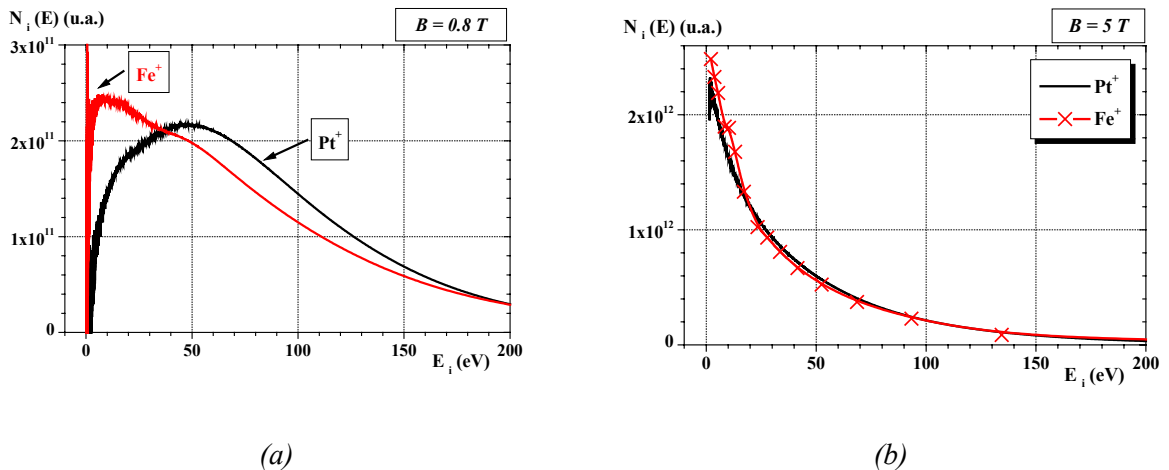


Fig. 28 : Comparaison des distributions énergétiques de Fe^+ et Pt^+ pour $V_b = -80 V$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$. (a) $B = 0.8 T$ et (b) $B = 5 T$. Les courbes du platine sont normalisées en surface sur celles du fer.

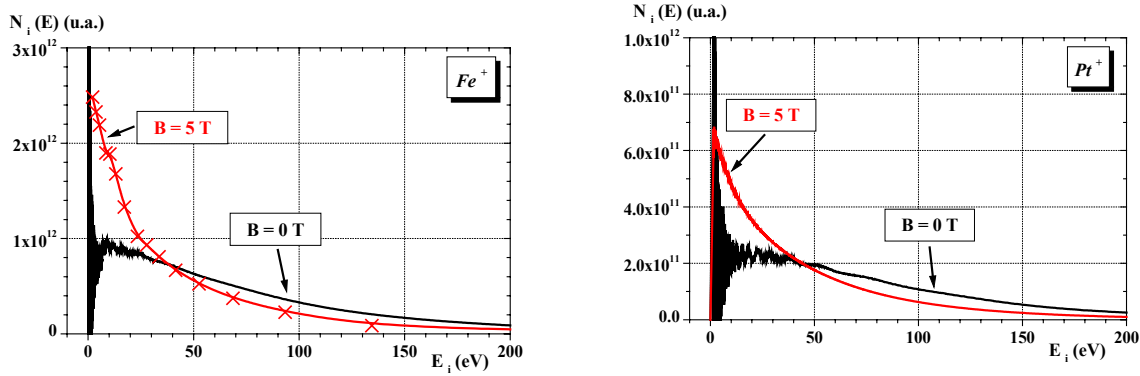


Fig. 29 : Comparaisons des distributions énergétiques des ions fer et platine sous $B = 0 T$ et $B = 5 T$. Les courbes à $0 T$ sont normalisées en surface sur celles de $5 T$. $V_b = -80 V$, $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible\ sonde} = 10 cm$.

| | $0 T$ | $0.8 T$ | $5 T$ |
|--------|-------|---------|-------|
| Fe^+ | 60 eV | 60 eV | 25 eV |
| Pt^+ | 60 eV | 60 eV | 30 eV |

Tab. 5 : Énergies moyennes des ions des plasmas de fer et platine, sous divers champs magnétiques. $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$. Ces énergies sont calculées graphiquement, en prenant comme valeur d'énergie moyenne celle correspondant à la moitié de l'aire sous la courbe.

Nous avons lié au chapitre précédent (Chapitre 3 Paragraphe IV.3.3 p. 89), la température électronique initiale à l'énergie cinétique par la relation : $k_B T_e = E_c / 3$. Les valeurs de la température initiale ainsi déduite sont de l'ordre de $T_{e,i} \approx 10 \times 10^4 K$, moitié de celles déduites en champ nul, représentative des ions qui se détendent selon l'axe cible-substrat. Cette valeur est en bon accord avec celles généralement reportées pour des plasmas générés par laser.

IV.4 Recombinaison et fraction ionique initiale

Sous champ magnétique, le taux de dépôt, déduit des mesures de pesées du substrat //, diminue lorsque la distance cible-substrat augmente (Fig. 5 p. 108). La matière qui n'arrive pas sur le substrat // est récoltée sur le substrat \perp , comme l'établit le fait que le nombre total d'espèces déposées, N_{tot} , est constant (Fig. 4 p. 108). Dans des conditions de dépôt classiques,

les espèces évaporées sont distribuées à l'intérieur d'un certain angle solide. La fraction de cet angle interceptée par un substrat de dimension donnée diminue lorsque la distance cible-substrat augmente, ce qui rend directement compte de la diminution du taux de dépôt. Cependant, dans le cas présent, dès que le champ appliqué est supérieur à $B \approx 1 T$, la grande majorité du dépôt apparent sur le substrat // est restreinte dans un angle solide qui est intégralement intercepté par le substrat. Le dépôt sur le substrat // devrait donc être constant. Ceci nous a amené à attribuer la diminution du taux de dépôt à des phénomènes de recombinaison.

Pour quantifier ce phénomène, nous supposons que le dépôt sur le substrat représente la fraction ionique totale. Deux hypothèses sont sous-jacentes : **(1)** aucun ion ne peut échapper au champ magnétique et **(2)** une fraction négligeable des atomes neutres issus de la recombinaison se déposent sur le substrat qui n'intercepte qu'une faible fraction de l'angle solide au sein duquel ceux-ci sont distribués. Soit τ_0^I , le temps caractéristique de recombinaison des ions de type I ($I = Al, Cu$ ou Mo), supposé indépendant du temps de mesure. Au temps t , le nombre total d'ions détectés $N_i^I(t)$ vaut :

$$N_i^I(t) = N_i^I(0)e^{-t/\tau_0^I}, \quad (15)$$

où $N_i^I(0)$ est le nombre total d'ions à l'instant initial. Considérant de plus que l'expansion se fait à vitesse constante, v^I , les temps peuvent être remplacés par des distances : $d = v^I/t$ et $d_0^I = v^I/\tau_0^I$, où d_0^I représente la distance caractéristique de recombinaison d'un ion de type I . La relation (15) peut être réexprimée sous la forme :

$$N_i^I(d) = N_i^I(0)e^{-d/d_0^I}. \quad (16)$$

En introduisant le dépôt total, pour chaque type d'ion, N_T^I , on arrive à :

$$\ln \frac{N_i^I(d)}{N_T^I} = \ln \frac{N_i^I(0)}{N_T^I} - \frac{d}{d_0^I}. \quad (17)$$

$\ln \frac{N_i^I(d)}{N_T^I}$ est tracé en fonction de d ($\equiv d_{\text{cible-substrat}}$) pour les 3 éléments, Al , Cu et Mo sur la

Fig. 30 (p. 135). À la précision des résultats, les variations observées peuvent être considérées comme linéaires et la pente des droites ainsi obtenues ne dépend pas de la densité d'énergie.

Cette pente donne accès à la distance de recombinaison, d_0^I . Pour les 3 éléments *Al*, *Cu* et *Mo*, les valeurs de d_0^I sont reportées dans le Tab. 6.

| | Al | Cu | Mo |
|--|-----------|--------------------|-------------------|
| d_0^I (cm) | 38 | 38 | 19 |
| Vitesse supposée (m s⁻¹) | 10^4 | 0.66×10^4 | 0.5×10^4 |
| τ_0^I (μs) | 38 | 57 | 38 |
| $f_i^I(0)$ à 1 J cm⁻² | 0.25 | 0.4 | 0.4 |
| $f_i^I(0)$ à 2.5 J cm⁻² | 0.5 | 0.75 | 0.85 |
| $f_i^I(0)$ à 5 J cm⁻² | 0.65 | 0.95 | 1 |

Tab. 6 : Distance de recombinaison, vitesse, temps de recombinaison et fraction ionique initiale des plasmas *Al*, *Cu* et *Mo*. $B = 5 T$.

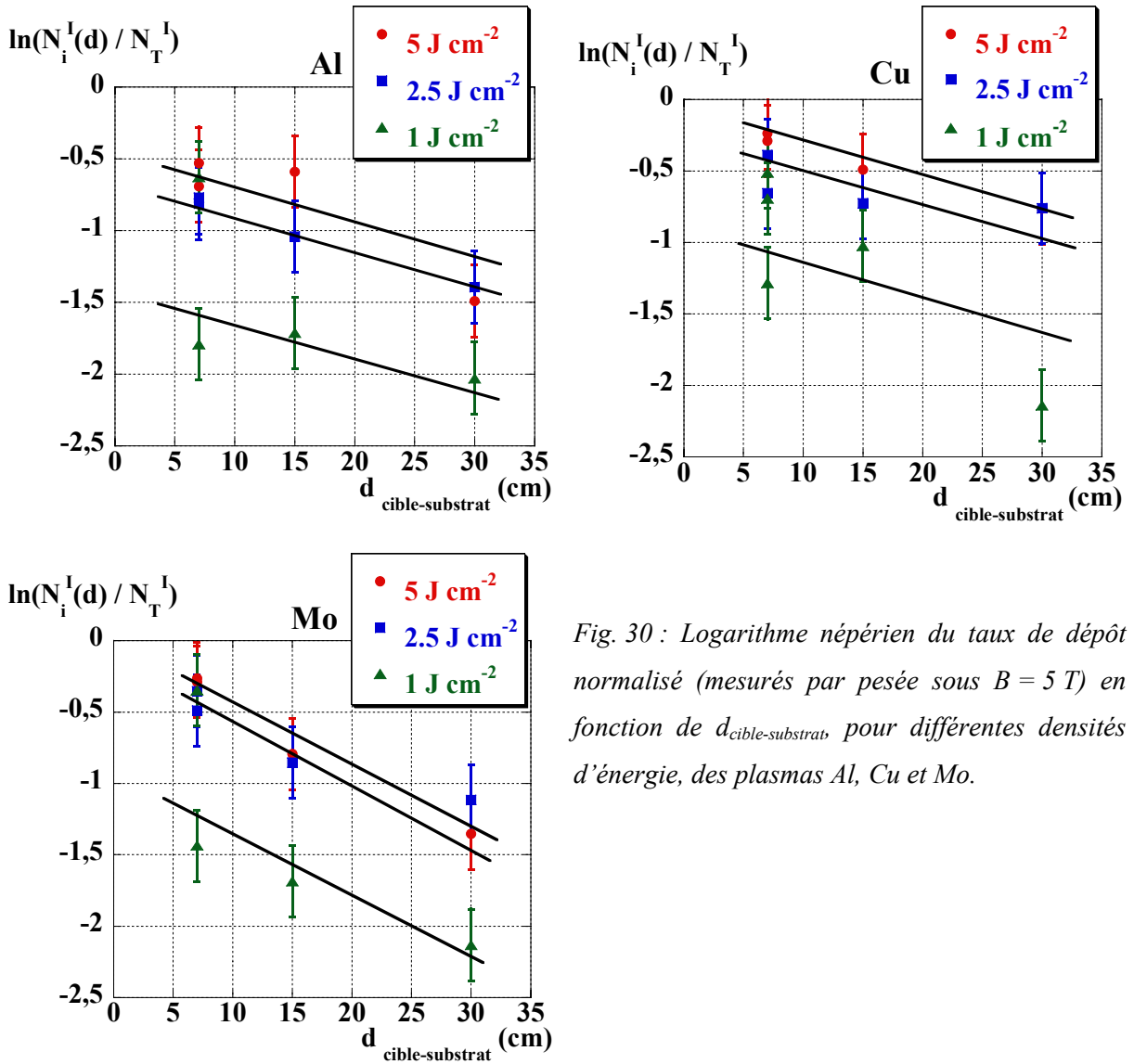


Fig. 30 : Logarithme népérien du taux de dépôt normalisé (mesurés par pesée sous $B = 5 \text{ T}$) en fonction de $d_{\text{cible-substrat}}$, pour différentes densités d'énergie, des plasmas Al, Cu et Mo.

Les vitesses d'expansion moyennes supposées ont été déduites de la mesure de signaux à la sonde de Langmuir, semblables à celles que nous avons reportées pour *Fe* et *Pt*, non décrites dans ce chapitre en raison de leur caractère fragmentaire. Les temps de recombinaison, τ_0^I , alors déduits sont de l'ordre de $40 - 50 \mu\text{s}$. L'ordonnée à l'origine des droites représentées sur la Fig. 30, donne la fraction ionique initiale, $f_i^I(0) = N_i^I(0) / N_T^I$. Elle est reportée aussi dans le Tab. 6 aux différentes densités d'énergie de mesure.

La mise en évidence de phénomènes de recombinaison nous a surpris au premier abord. En champ nul, nous avons observé en effet que les taux de recombinaison étaient supérieurs aux temps caractéristiques de nos expériences (Chapitre 3 Paragraphe IV.3.2 p. 88). Mais les densités de plasmas sous champ magnétique, de 10^{19} à 10^{20} m^{-3} , sont environ de 2 ordres de

grandeur supérieures à celles en champ nul. Or, le temps d'échange associé à la recombinaison à trois corps varie comme $\tau_c \propto T_e^{9/2} / n_e^2$. Sous champ magnétique, pour une même température électronique, il est divisé par un facteur de l'ordre de 10^4 . La variation théorique de τ_c en fonction de n_e est représentée sur la Fig. 31 (il s'agit d'une autre présentation de la Fig. 4 du Chapitre 2 p. 41). Supposant une densité de $5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$, un temps de recombinaison de $50 \mu\text{s}$ est obtenu pour une température électronique proche de 0.3 eV . Une telle valeur est compatible avec celles que nous avons obtenues en champ magnétique nul (voir Paragraphe IV.3.1 p. 126).

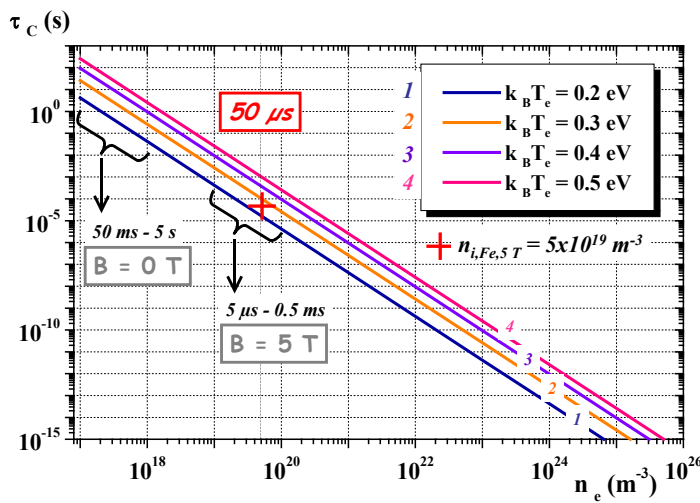


Fig. 31 : Temps d'échange associé à la recombinaison à trois-corps, τ_c (en s), en fonction de la densité du plasma (m^{-3}), pour des valeurs de T_e de 0.2 ($n^\circ 1$), 0.3 ($n^\circ 2$), 0.4 eV ($n^\circ 3$) et 0.5 eV ($n^\circ 4$).

Expérimentalement, la densité expérimentale du plasma est approximativement proportionnelle au carré de l'irradiance, I (voir Chapitre 3 Fig. 17 p. 81). Considérant que T_e est approximativement proportionnel à $I^{1/2}$ (voir Chapitre 2 relation (1) p. 36), on déduit que $\tau_c \propto I^{0.25}$. Entre 5 J cm^{-2} et 2.5 J cm^{-2} , la variation de pente calculée est de 20 %, entre 5 J cm^{-2} et 1 J cm^{-2} elle est de 50 %. L'imprécision des mesures ne permet pas de révéler de telles variations.

La variation de la fraction ionique initiale, $f_i^I(0)$, en fonction de la densité d'énergie, est présentée sur la Fig. 32 pour les 3 éléments *Al*, *Cu* et *Mo*. $f_i^I(0)$ dépend beaucoup de la densité d'énergie du faisceau. Aux densités d'énergie les plus faibles, la variation du taux d'ionisation d'un élément à l'autre doit être rapprochée de la différence entre seuils d'ionisation, nécessairement liés aux variations des seuils d'ablation. Aux fortes densités d'énergie, la fraction ionisée est très importante. On peut rapprocher les différences observées

entre éléments de l'observation que la fraction ionique augmente lorsque la volatilité de l'éléments décroît [6] (voir Chapitre 3 Paragraphe IV.1 p. 76).

Les valeurs de fraction ionique initiale varient de 0.2 pour Al, sous $1 J cm^{-2}$, à 1 pour Mo et sous $5 J cm^{-2}$. Ces valeurs de fractions ioniques sont de l'ordre de grandeur de celle reportées dans la littérature (voir Chapitre 2 Paragraphe II.4 p. 44 et ses références, comme par exemple [9] [10]). Elles impliquent que le taux d'ionisation n'est pas fortement altéré par l'application d'un champ magnétique et qu'une forte densité d'énergie incidente est indispensable pour atteindre de forts taux d'ionisation. Aux premiers stades de l'expansion, durant lesquels le taux d'ionisation est défini, l'expansion est essentiellement unidimensionnelle, perpendiculaire à la cible. À ce stade, le champ magnétique ne joue pas sur les processus d'expansion, ce qui explique le résultat observé.

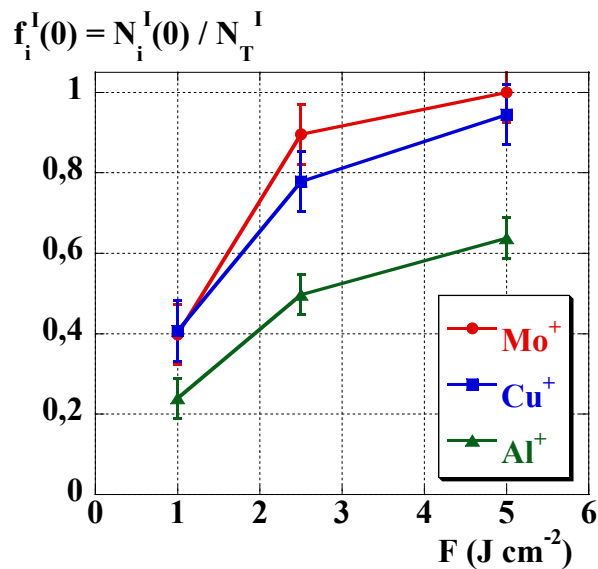


Fig. 32 : Dépendance en densité d'énergie de la fraction ionique initiale des plasmas Al, Cu et Mo.

L'analyse présentée dans ce paragraphe repose sur l'hypothèse que les temps de recombinaison ne dépendent pas du temps de mesure. Nous considérons une fois encore que $T_e \propto n_e^{\gamma-1}$. Supposant que $\gamma = 1.25$ (voir Chapitre 3 Paragraphe IV.3.6 p. 93), on en déduit que τ_c est approximativement proportionnel à $n_e^{0.25}$. Négligeant l'expansion transversale au champ magnétique, la densité décroît d'un facteur 4 lorsque la distance augmente de 7 à 30 cm, et τ_c devrait être divisé d'un facteur 1.4. Comme nous l'avons vu ci-dessus, une telle variation du temps de recombinaison peut être raisonnablement négligée en raison de la faible précision de ces mesures.

V CONCLUSION

Les résultats présentés dans ce chapitre constituent la première caractérisation, à notre connaissance, de plasmas générés par laser sous des champs magnétiques intenses, supérieurs à $1 T$. Nous nous sommes fondés sur de simples mesures de pesées et avons su utiliser une sonde de Langmuir pour nos caractérisations. Le confinement de la matière par le champ magnétique facilite en fin de compte la détermination de plusieurs paramètres physiques. Nous avons obtenu en particulier le taux de dépôt par impulsion, l'énergie moyenne des espèces évaporées et les paramètres représentant, au premier ordre, la température du plasma et les effets de recombinaison.

VI RÉFÉRENCES

- 1 **C.R. Phipps et R.W. Dreyfus**, *Laser ablation and plasma formation (Chap. 4 : The high laser irradiance regime)*, dans *Laser ionization mass analysis*, A. Vertes, R. Gijbels et F. Adams, Editors (1993) John Wiley and Sons New York, p. 369-431.
- 2 **D. Batani, S. Alba, P. Lombardi et A. Galassi**, *Use of Langmuir probes in a weakly ionized, steady-state plasma with strong magnetic field*. Rev. Sci. Instrum., 68(11) (1997) p. 4043-4050.
- 3 **J.A. Tagle, P.C. Stangeby et S.K. Erents**, *Errors in measuring electron temperatures using a single Langmuir probe in a magnetic field*. Plasma Phys. Controlled Fusion, 29(3) (1987) p. 297-301.
- 4 **P.C. Stangeby**, *The interpretation of plasma probes in fusion experiments*, dans *Plasma diagnostics, Vol. 2 Surface analysis and interactions*, O. Auciello et D.L. Flamm, Editors (1989) Academic Press Boston, p. 157-209.
- 5 **R.A. Pitts et P.C. Stangeby**, *Experimental tests of Langmuir probe theory for strong magnetic fields*. Plasma Phys. Controlled Fusion, 32(13) (1990) p. 1237-1248.
- 6 **B. Thestrup, B. Toftmann, J. Schou, B. Doggett et J.G. Lunney**, *Ion dynamics in laser ablation plumes from selected metals at 355 nm*. Appl. Surf. Sci., 197-198 (2002) p. 175-180.
- 7 **B. Toftmann, J. Schou et J.G. Lunney**, *Dynamics of the plume produced by nanosecond ultraviolet laser ablation of metals*. Phys. Rev. B, 67(10) (2003) p. 104101/1-5.
- 8 **J.M. Hendron, C.M.O. Mahony, T. Morrow et W.G. Graham**, *Langmuir probe measurements of plasma parameters in the late stages of a laser ablated plume*. J. Appl. Phys., 81(5) (1997) p. 2131-2134.
- 9 **R.W. Dreyfus**, *Cu^0 , Cu^+ , and Cu_2 from excimer-ablated copper*. J. Appl. Phys., 69(3) (1991) p. 1721-1729.
- 10 **T.N. Hansen, J. Schou et J.G. Lunney**, *Angular distributions of silver ions and neutrals emitted in vacuum by laser ablation*. Europhys. Lett., 40(4) (1997) p. 441-446.

CHAPITRE 5 :

DU PLASMA AU DÉPÔT

CONCLUSION

Dans le cadre de ce travail, j'ai étudié les propriétés de plasmas obtenus par dépôt laser pulsé. En champ magnétique nul, l'examen de matériaux divers m'a permis de mettre en évidence des comportements de caractère général. Les seuils et taux d'ablation sont au premier ordre liés à la valeur de la température de fusion des éléments. Les autres propriétés du plasma ne dépendent que peu de la nature des éléments en jeu. Dans nos conditions expérimentales, l'expansion peut être considérée comme inertielle. L'énergie moyenne des ions est comprise entre 60 eV et 100 eV et leur vitesse est proportionnelle à $I^{1/4} / A^{1/2}$, en accord avec la théorie dans le régime de très forte irradiation. En considérant que l'énergie cinétique des ions trouve son origine dans l'énergie thermique initiale des constituants du plasma, nous avons déduit la valeur de la température électronique au début de l'expansion et nous sommes ainsi remontés à la valeur de la constante adiabatique γ . Une même valeur de $\gamma (= 1.2)$ a été déduite de l'analyse de la distribution angulaire de l'expansion dans le modèle de Anisimov. La réduction de γ par rapport à la valeur $5/3$ a été attribuée aux mécanismes possibles d'excitation et recombinaison du plasma, en particulier aux premiers stades de l'expansion.

J'ai développé un montage original qui a permis, pour la première fois, de caractériser des plasmas générés par laser dans des champs magnétiques intenses jusqu'à 5 T . Un très fort confinement du plasma a été obtenu. Dans les meilleures conditions, une fraction qui représente jusqu'à 75% de l'ensemble de la matière évaporée est déposée sur un substrat de 3.5 cm de diamètre, placé à une distance de 7 cm de la cible. J'ai analysé le fonctionnement d'une sonde de Langmuir en champ très intense. L'information la plus importante apportée par la sonde est celle du courant ionique à saturation. On en déduit directement quelle est la quantité de matière évaporée à chaque impulsion laser. La collection par la sonde de toutes les espèces contenues dans le plasma donne accès à son énergie moyenne. Celle-ci est environ la moitié de l'énergie moyenne des ions qui, en champ nul, sont détectés face à la cible. La température initiale du plasma a été déduite selon la même méthode qu'en champ nul, elle est de l'ordre de 10 eV , en très bon accord avec les modèles théoriques. La température électronique, déduite des mesures de sonde de Langmuir, est proche de celle obtenue en champ nul. Ceci implique que les mécanismes d'expansion ne sont pas fortement altérés sous champ magnétique. Ce résultat justifie la méthode utilisée pour relier la distribution en énergie des espèces aux distributions obtenus en champ nul, selon les diverses directions d'expansion. Aux temps caractéristiques de $1 \mu\text{s}$ à $50 \mu\text{s}$, j'ai montré que les phénomènes de

Conclusion

recombinaison des ions n'étaient pas négligeables alors qu'ils le sont en champ nul. J'ai relié ce phénomène à la plus grande densité des plasmas obtenue sous champ magnétique.

La meilleure compréhension des mécanismes régissant le comportement des plasmas générés par laser, nous a permis de proposer une approche originale d'élaboration de dépôts directement structurés. La description de cette méthode est présentée dans une annexe confidentielle. Une demande de brevet est en cours.

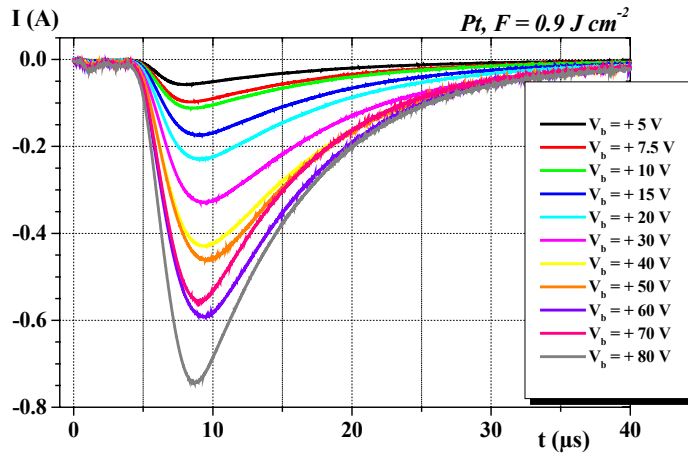
Le dépôt laser pulsé est une technique de préparation de films utilisée en laboratoire en raison de sa flexibilité et de la possibilité d'élaborer des matériaux de natures diverses. Par la possibilité d'augmenter considérablement les taux de dépôt et celle de réaliser des dépôts directement structurés, nos résultats devraient permettre à cette technique de se développer encore. Avec la disponibilité de lasers de plus en plus puissants, des utilisations industrielles pour des applications particulières sont peut-être envisageables, par exemple pour la réalisation directe de micro-systèmes incluant un nombre divers d'éléments de fonctionnalités différentes.

ANNEXE A :

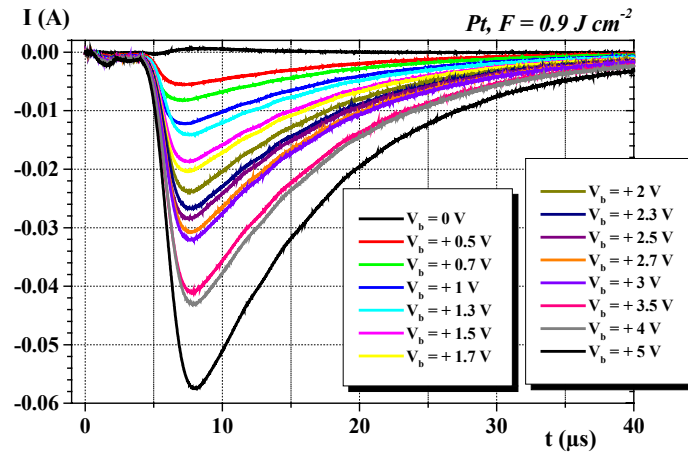
*DONNÉES MESURÉES PAR
LA SONDE DE LANGMUIR EN
CHAMP MAGNÉTIQUE NUL*

I(t)

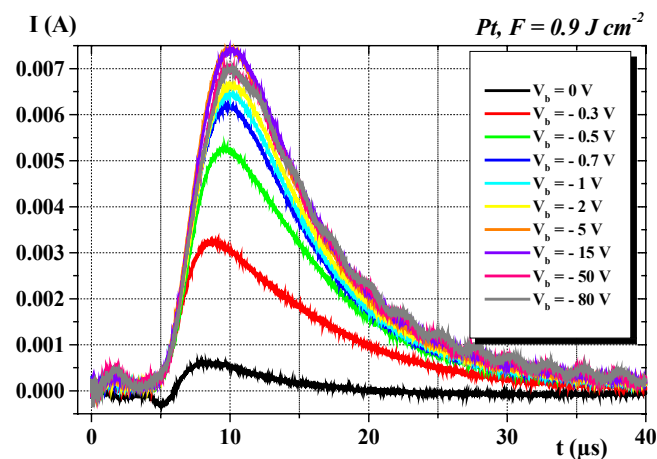
Les courbes $I(t)$ ($0 \mu s < t < 40 \mu s$) du courant détecté par la sonde de Langmuir en fonction du temps de vol, t , ont été mesurées pour différentes tensions fixes, V_b , appliquées à la sonde, comprises entre $+ 80 V$ et $- 80 V$ (*Fe* et *Pt*) ou entre $+ 30 V$ et $- 30 V$ (*Al*, *Cu* et *Mo*). $t = 0 \mu s$ correspond au moment où le faisceau laser irradie la cible de fer. L'ensemble des courbes $I(t)$ obtenues est présenté sur les Fig. 1 à Fig. 10 (p. 170 à p. 179), pour des distances cible-sonde de $10 cm$ pour les plasmas de fer et platine et de $15 cm$ pour les plasmas d'aluminium, cuivre et molybdène. Sur chacune de ces figures, les graphes (a) et (b) représentent le courant électronique collecté par la sonde selon $V_b > 0$ et les graphes (c) le courant ionique en fonction de $V_b < 0$. Les courbes $I(t)$ du fer sont présentées dans le Chapitre 3 Paragraphe IV.2 (Fig. 14 p. 78).



(a)

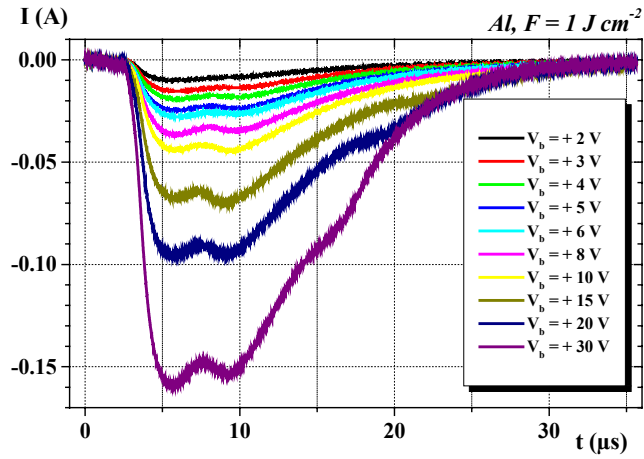


(b)

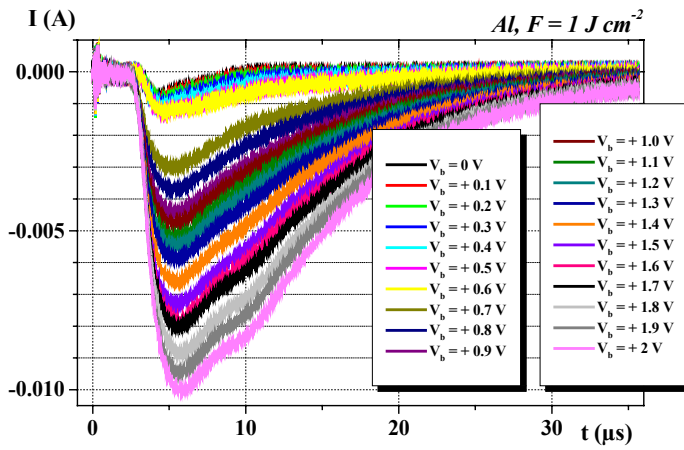


(c)

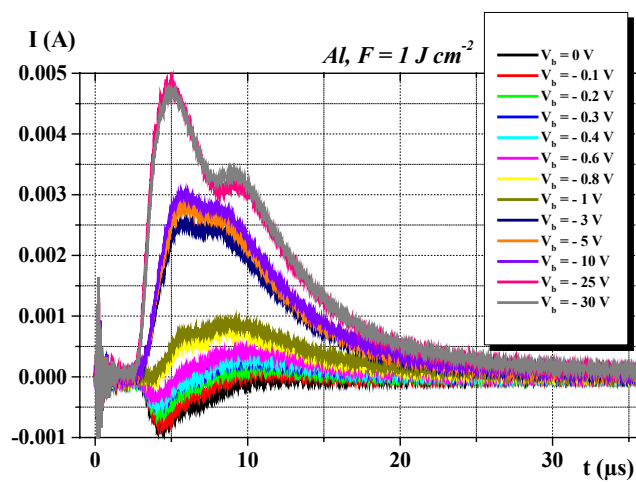
Fig. 1 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de platine pour V_b variant de + 80 V à - 80 V. $F = 0.9 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 10 cm$.



(a)

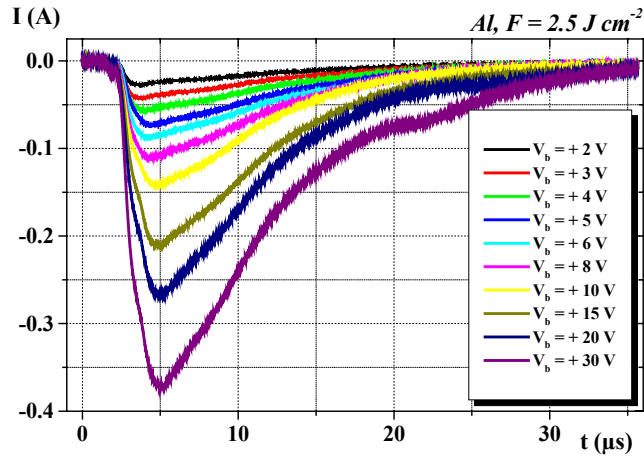


(b)

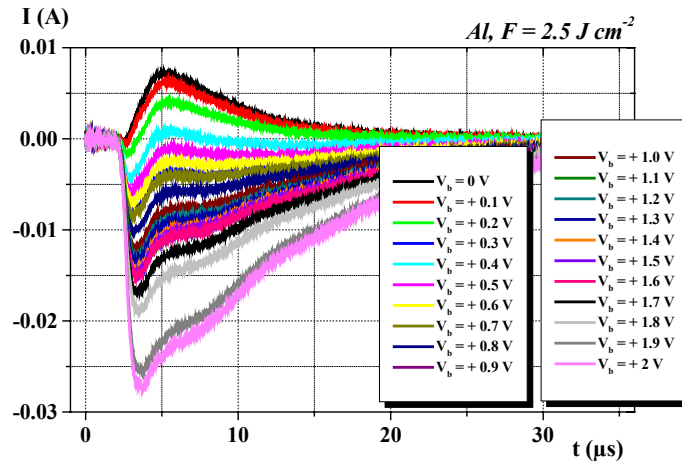


(c)

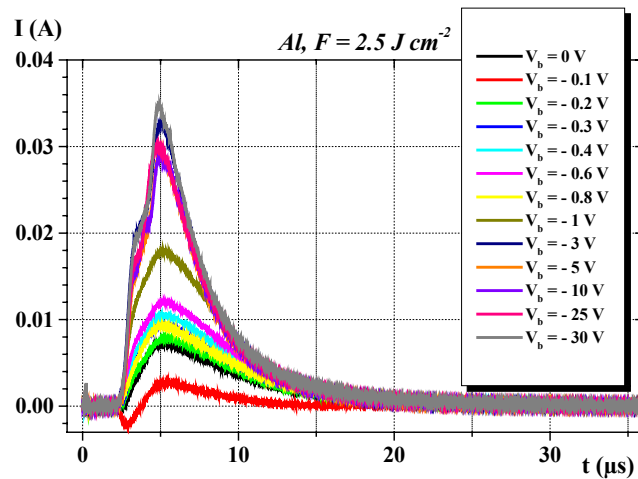
Fig. 2 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma d'aluminium pour V_b variant de +30 V à -30 V. $F = 1 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



(a)

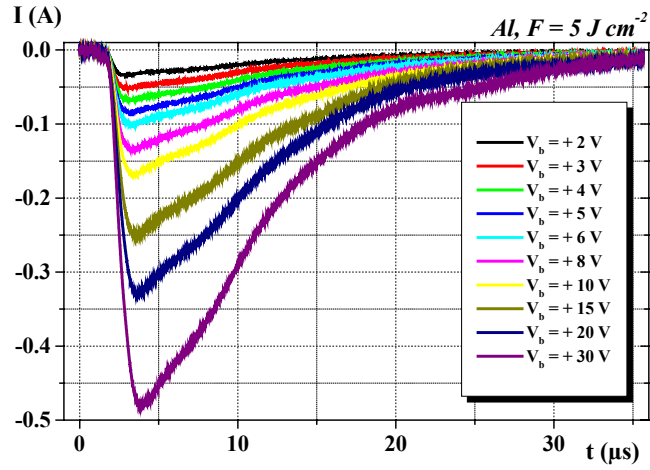


(b)

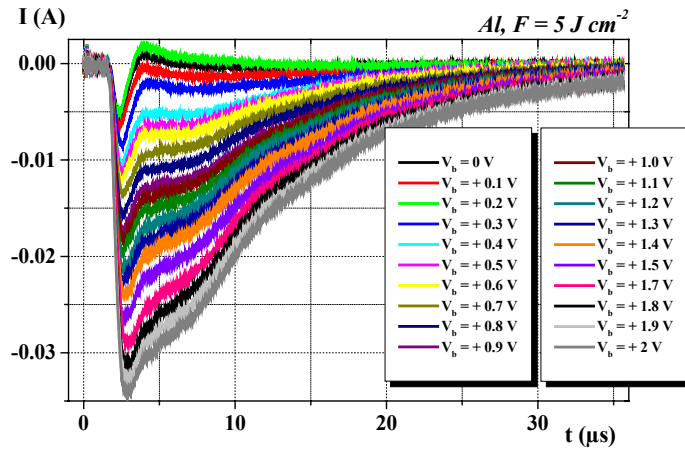


(c)

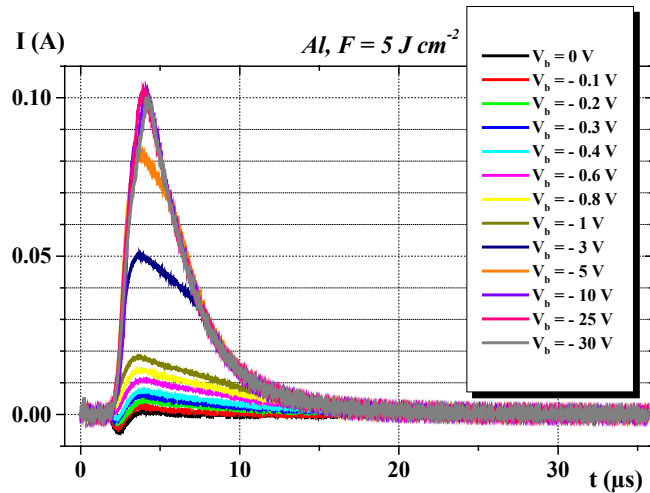
Fig. 3 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma d'aluminium pour V_b variant de + 30 V à - 30 V. $F = 2.5 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 15 cm$.



(a)

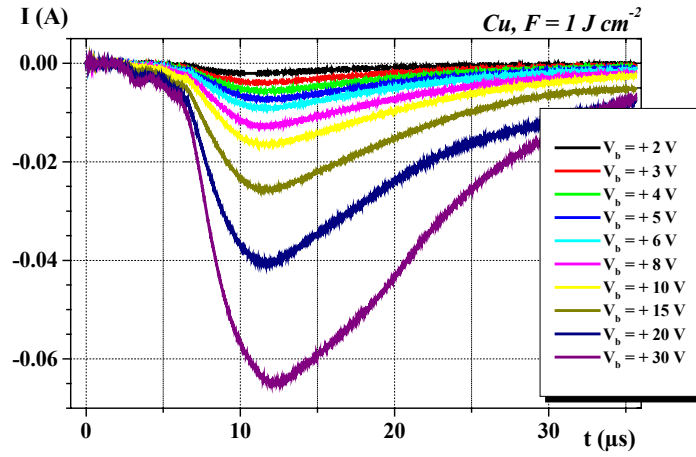


(b)

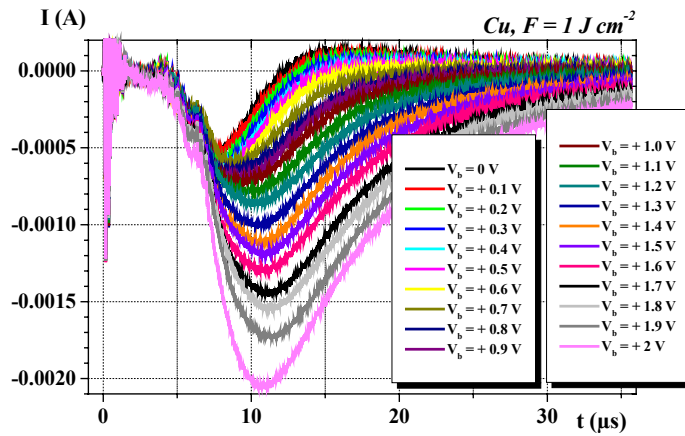


(c)

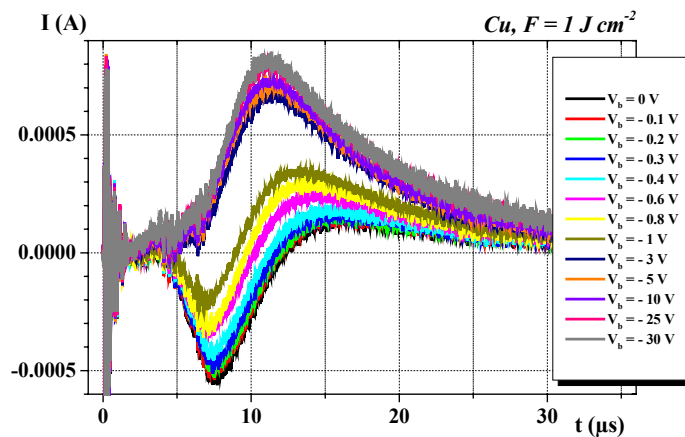
Fig. 4 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma d'aluminium pour V_b variant de +30 V à -30 V. $F = 5 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



(a)

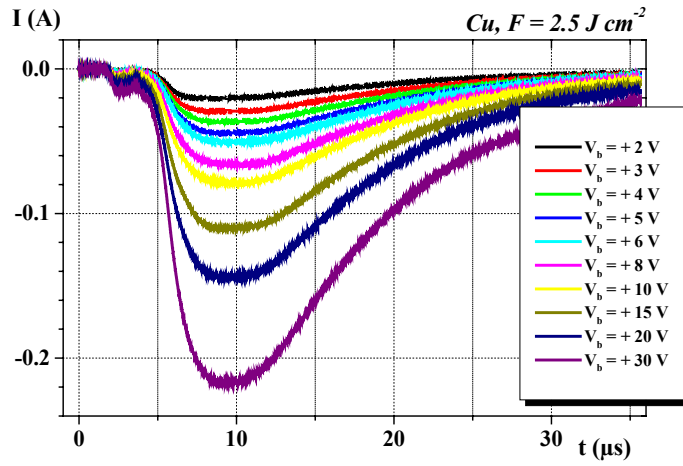


(b)

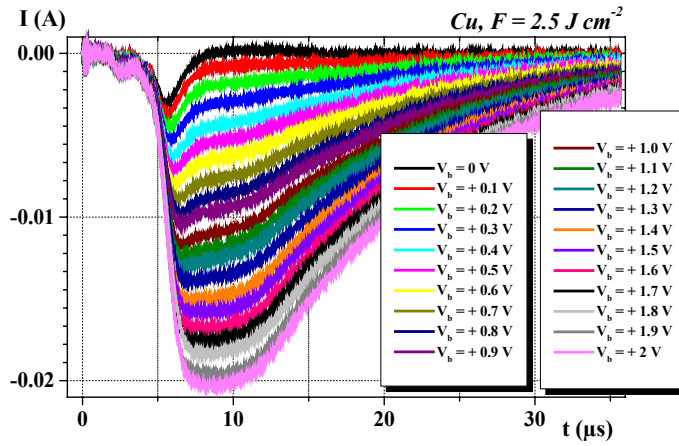


(c)

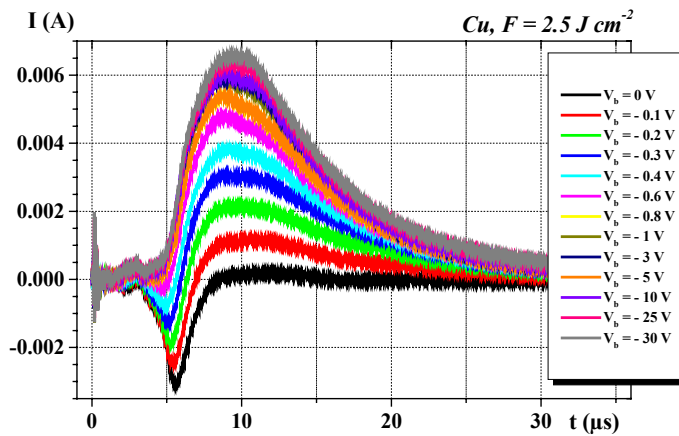
Fig. 5 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de cuivre pour V_b variant de + 30 V à - 30 V. $F = 1 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



(a)

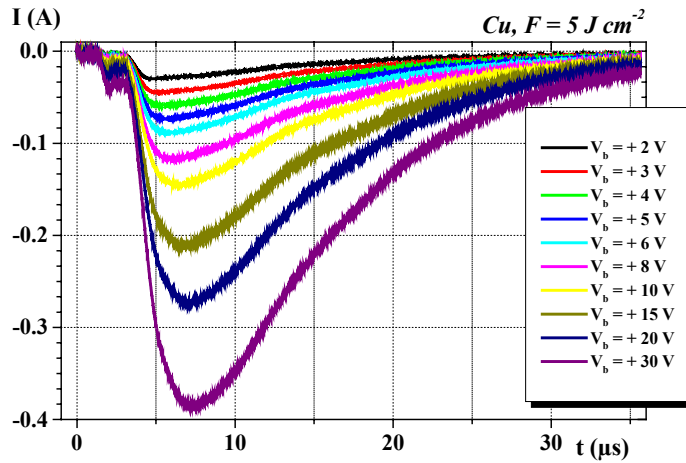


(b)

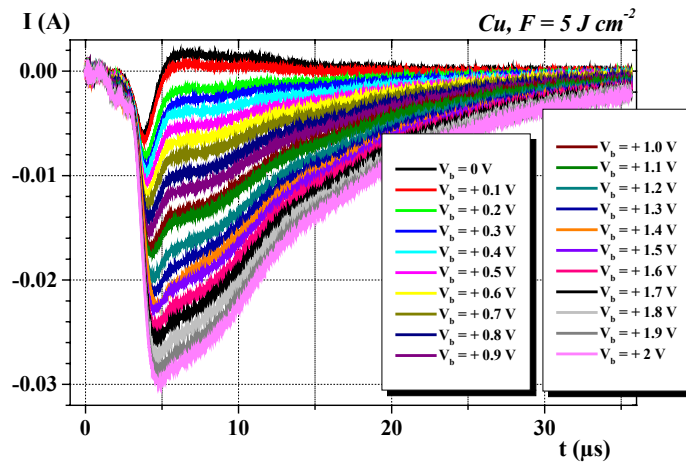


(c)

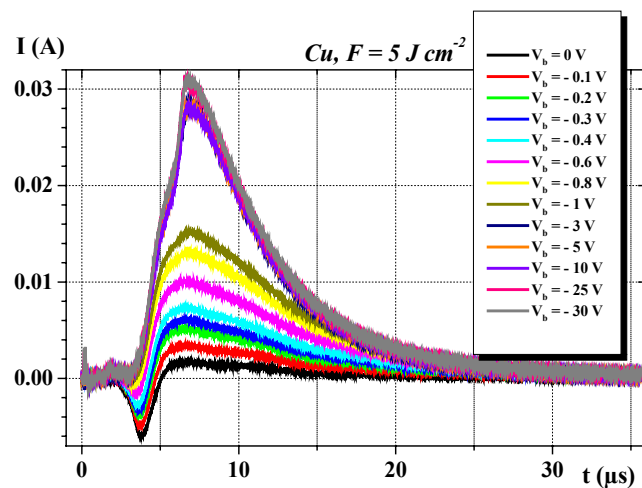
Fig. 6 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de cuivre pour V_b variant de + 30 V à - 30 V. $F = 2.5 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



(a)

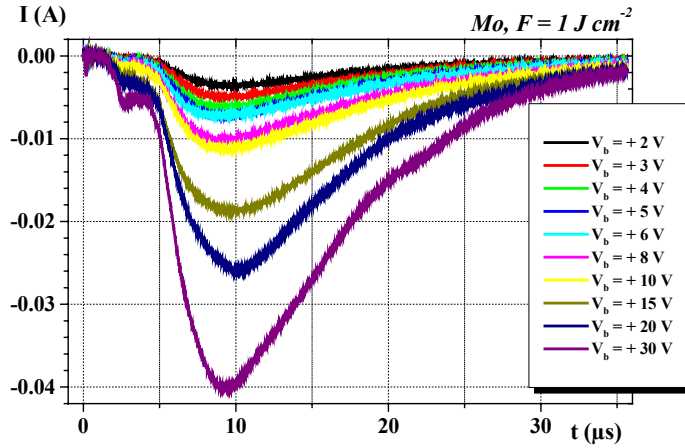


(b)

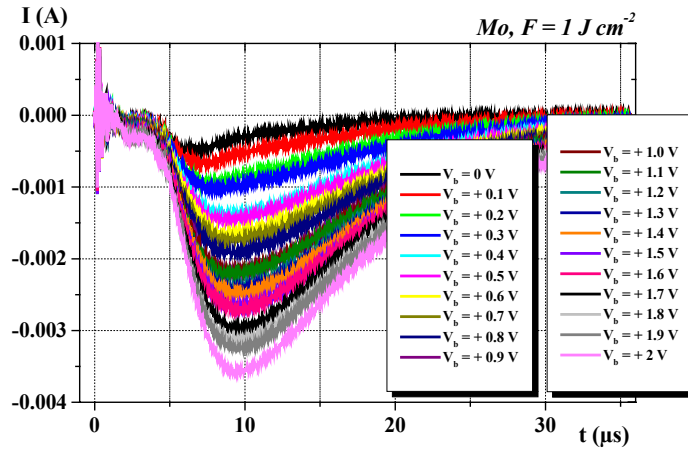


(c)

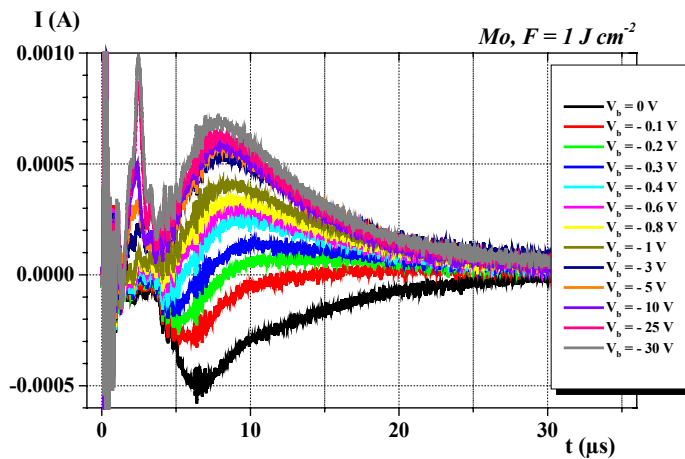
Fig. 7 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de cuivre pour V_b variant de $+30 \text{ V}$ à -30 V . $F = 5 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



(a)

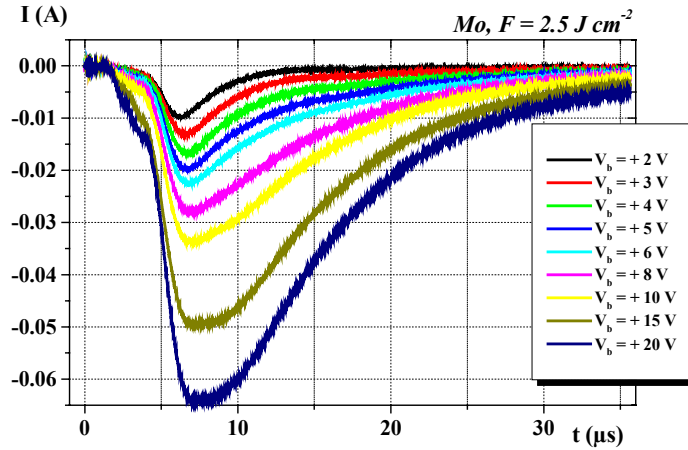


(b)

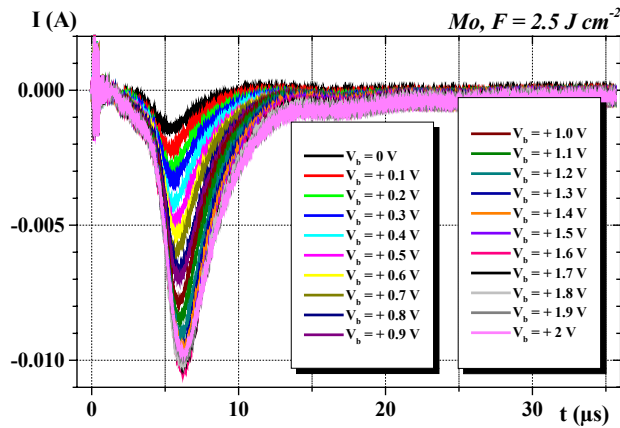


(c)

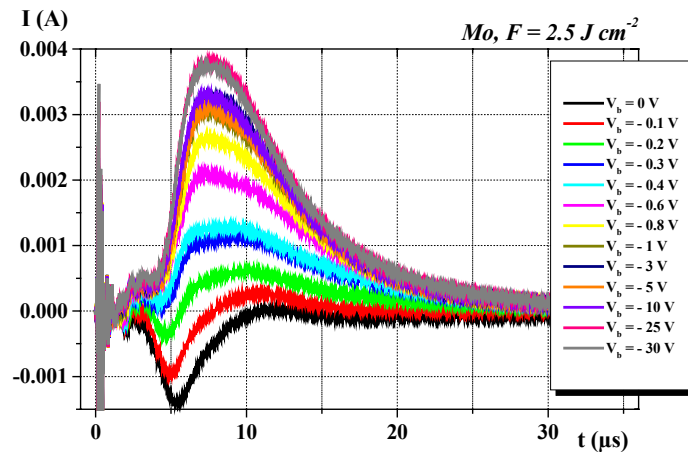
Fig. 8 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de molybdène pour V_b variant de +30 V à -30 V. $F = 1 \text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



(a)



(b)



(c)

Fig. 9 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de molybdène pour V_b variant de $+30\text{ V}$ à -30 V . $F = 2.5\text{ J cm}^{-2}$, $d_{\text{cible-sonde}} = 15\text{ cm}$.

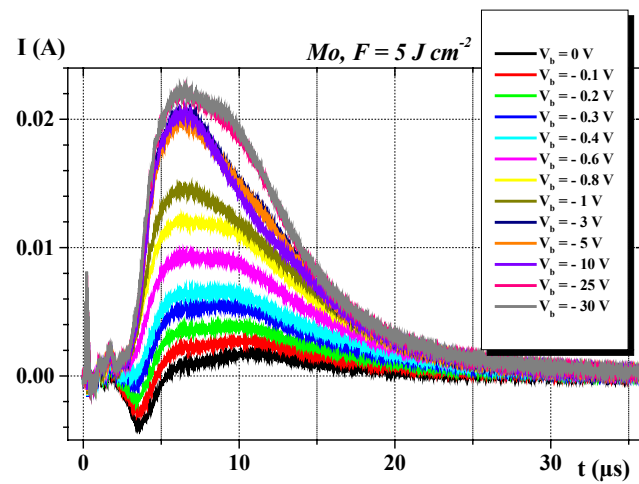
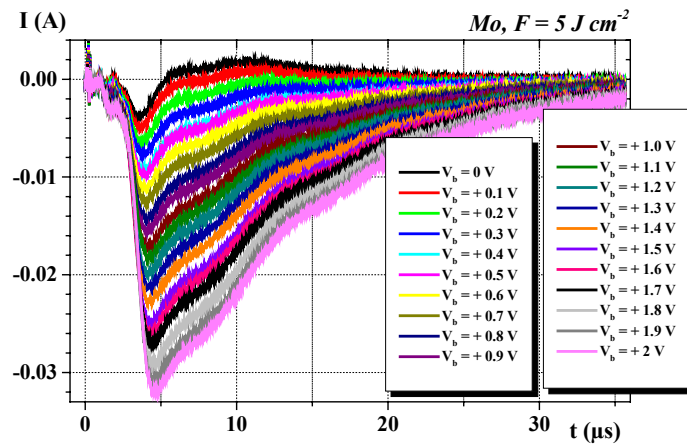
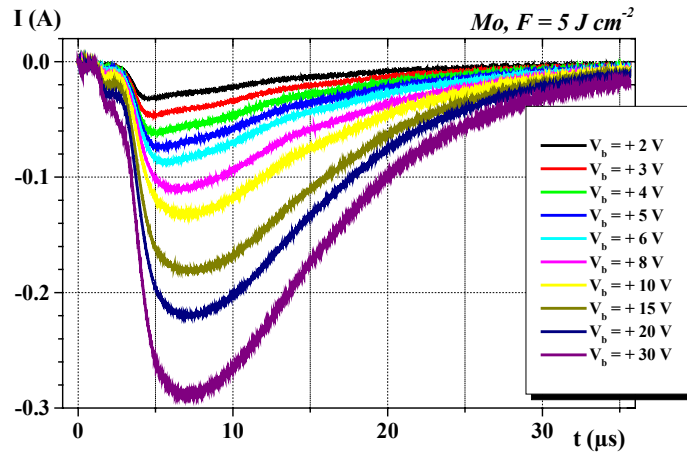
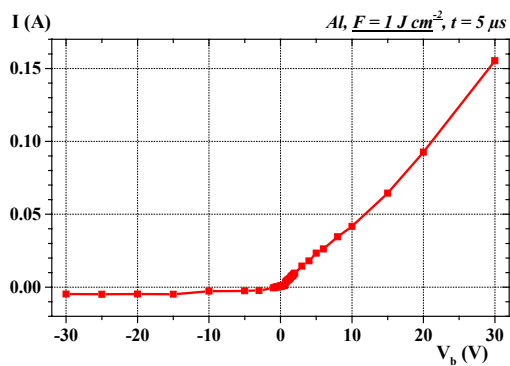


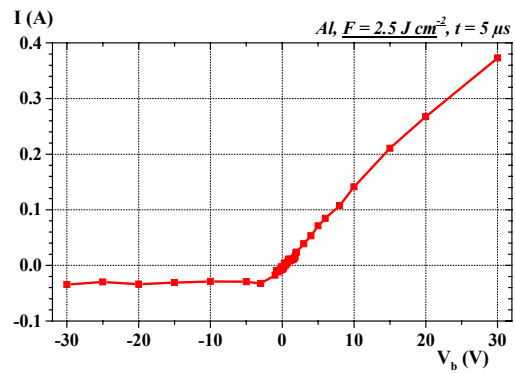
Fig. 10 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir immergée dans un plasma de molybdène pour V_b variant de +30 V à -30 V. $F = 5 J cm^{-2}$, $d_{cible-sonde} = 15 cm$.

I(V_b)

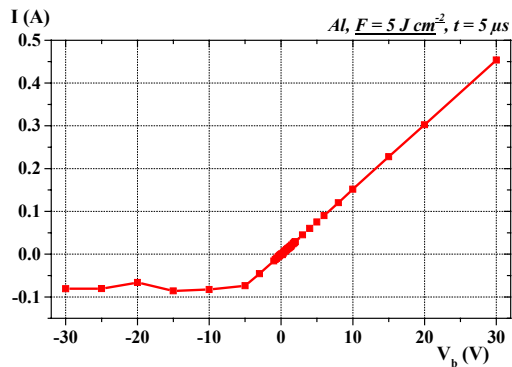
Les courbes $I(V_b)$ à différents temps de vol, ont été déduites de l'ensemble des courbes $I(t)$. Les courbes $I(V_b)$ obtenues sont présentées sur les Fig. 11 à Fig. 15 (p. 180 à p. 183), à des temps de vol représentatifs des systèmes.



(a)

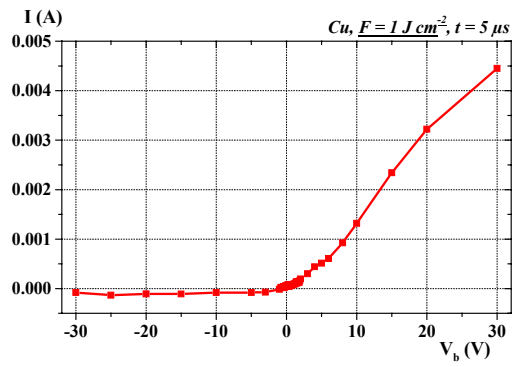


(b)

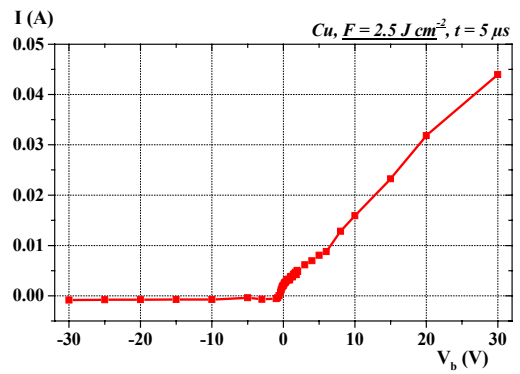


(c)

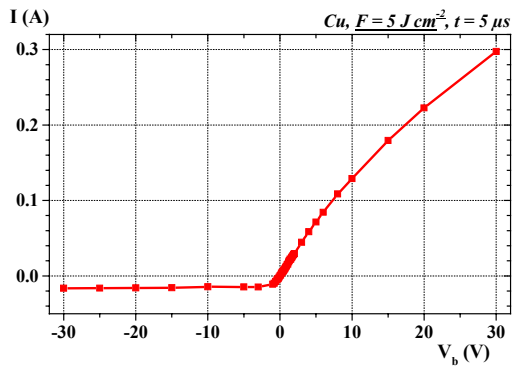
Fig. 11 : $I(V_b)$ pour le plasma Al, à $t = 5 \mu\text{s}$ et des densités d'énergie de (a) 1 J cm^{-2} , (b) 2.5 J cm^{-2} et (c) 5 J cm^{-2} . $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



(a)



(b)



(c)

Fig. 12 : $I(V_b)$ pour le plasma Cu, à $t = 5 \mu\text{s}$ et des densités d'énergie de (a) 1 J cm^{-2} , (b) 2.5 J cm^{-2} et (c) 5 J cm^{-2} . $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.

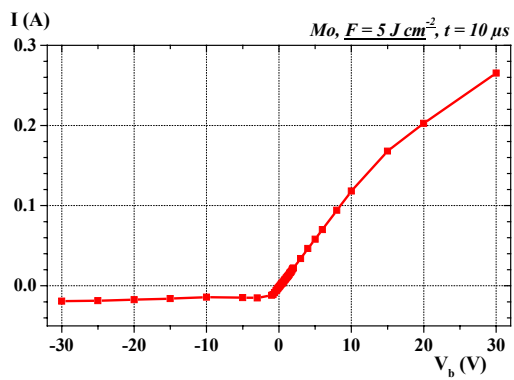
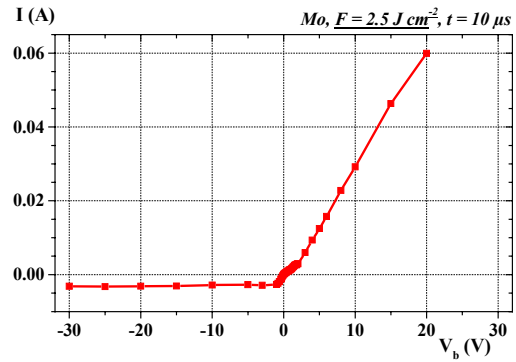
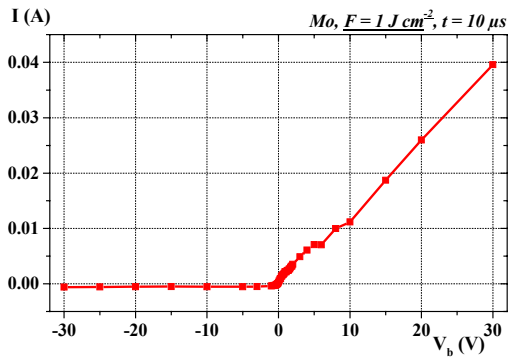
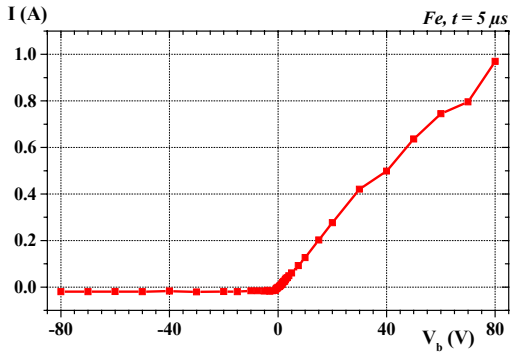
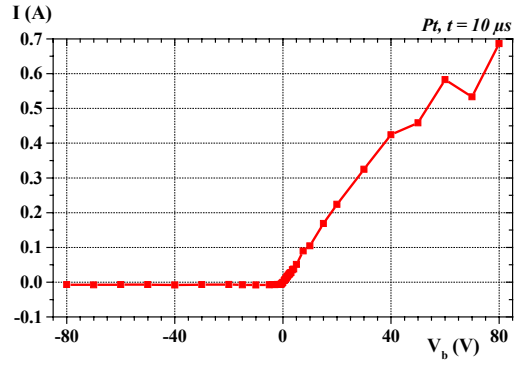


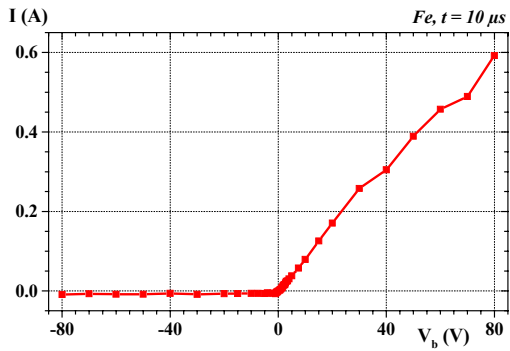
Fig. 13 : $I(V_b)$ pour le plasma Mo, à $t = 10 \mu\text{s}$ et des densités d'énergie de (a) 1 J cm^{-2} , (b) 2.5 J cm^{-2} et (c) 5 J cm^{-2} . $d_{\text{cible-sonde}} = 15 \text{ cm}$.



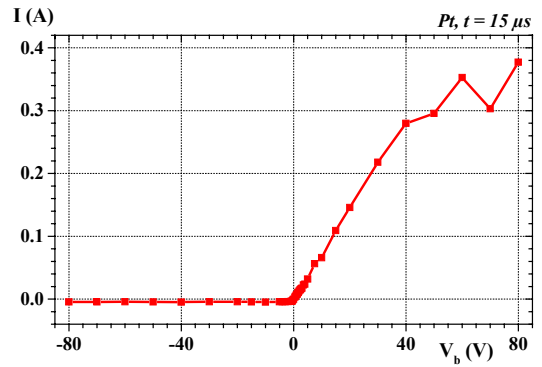
(a)



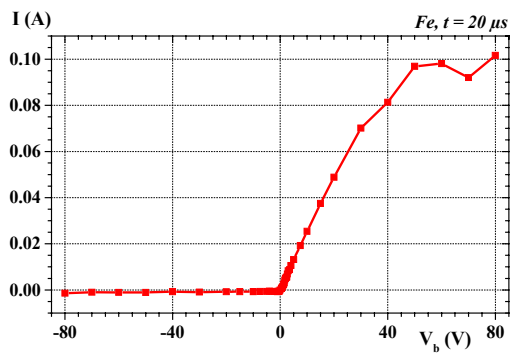
(a)



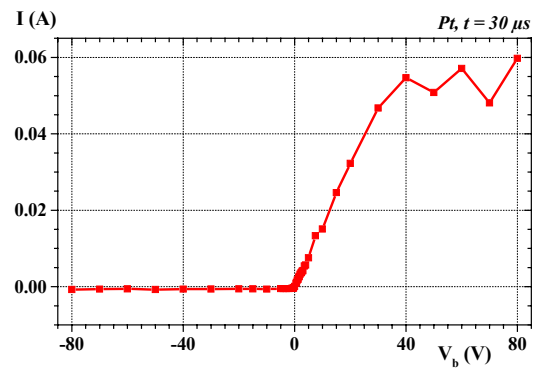
(b)



(b)



(c)



(c)

Fig. 14 : $I(V_b)$ pour le plasma Fe, à des temps de vol de (a) $5 \mu s$, (b) $10 \mu s$ et (c) $20 \mu s$. $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$.

Fig. 15 : $I(V_b)$ pour le plasma Pt, à des temps de vol de (a) $10 \mu s$, (b) $15 \mu s$ et (c) $30 \mu s$. $F = 0.9 J cm^{-2}$ et $d_{cible-sonde} = 10 cm$.

$\ln(I_e(V_b))$

La contribution du signal ionique a été retranchée aux données $I(V_b)$ selon la procédure décrite au Chapitre 3 Paragraphe III.2 (p. 69). À titre d'exemple, les variations déduites du logarithme du courant électronique, $\ln(I_e)$, en fonction de V_b sont présentées sur les Fig. 16 et Fig. 17, pour le fer ($t = 4 \mu s$) et le platine ($t = 10 \mu s$).

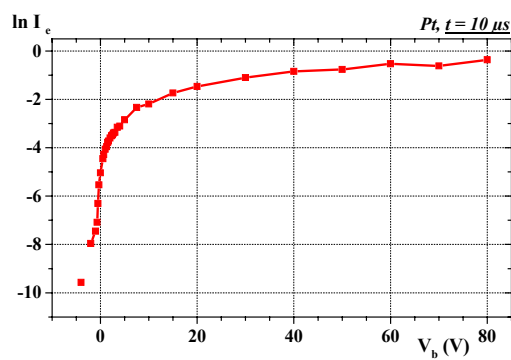
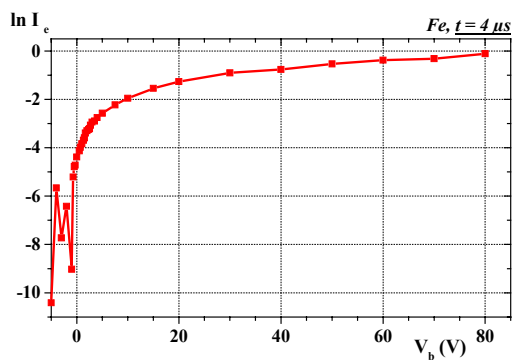


Fig. 16 : $\ln I_e(V_b)$ pour le plasma Fe, à un temps de vol de $4 \mu s$. $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$ et $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$.

Fig. 17 : $\ln I_e(V_b)$ pour le plasma Pt, à un temps de vol de $10 \mu s$. $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$ et $d_{\text{cible-sonde}} = 10 \text{ cm}$.

ANNEXE B :

TECHNIQUES DE CARACTÉRISATION

STRUCTURALE ET MAGNÉTIQUE

Microscopie électronique à balayage (MEB)

Le microscope électronique à balayage utilisé est de type JEOL 4002 (Laboratoire de Cristallographie, CNRS-Grenoble), d'énergie $1 - 20 \text{ keV}$. Le faisceau d'électrons produit par le chauffage du filament d'un canon à électrons est accéléré entre l'anode et la cathode par une différence de potentiel ($500 \text{ V} - 30 \text{ kV}$). Le faisceau d'électrons est focalisé sur l'échantillon par des bobines de champ magnétique (« lentilles magnétiques »). Les électrons secondaires issus du matériau, suite à l'interaction avec les électrons incidents, sont collectés par un détecteur. L'image obtenue sur l'écran du microscope est le signal en chaque point (x, y) du champ balayé sur la surface de l'échantillon.

La fonction de microanalyse X (EDX, Energy Dispersive X-ray spectroscopy) permet une évaluation quantitative de la composition chimique à partir du spectre de fluorescence X émis par un échantillon exposé au faisceau d'électrons. La profondeur sondée par cette technique est d'environ $1 \mu\text{m}$. La résolution maximale de l'appareil est de l'ordre de 500 nm . Les matériaux magnétiques ne facilitent pas les observations par MEB. Les champs de fuite de l'échantillon peuvent perturber les trajectoires des électrons et abaissent ainsi la résolution.

Dernièrement, le CRTBT (CNRS - Grenoble) a fait l'acquisition d'un MEB équipé d'une sonde de type FET (Focalised Electron Transmission). La résolution de cet appareil est bien supérieure. Il est possible de distinguer des épaisseurs de couches de l'ordre de 50 nm .

Mesures d'aimantation

Les mesures d'aimantation ont été effectuées sur le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM), de type Oxford 8000, du laboratoire. Il s'agit d'une technique de magnétométrie par mesure macroscopique de flux. L'appareil possède une valeur maximale de champ magnétique de $8 T$ (l'axe du champ magnétique est vertical) et la gamme de températures est de $2 K$ à $300 K$. Dans ce type de mesures, la canne porte-échantillon est soumise à des vibrations de faibles amplitudes ($1.5 mm$) selon l'axe vertical (environ $57 Hz$). La fréquence du courant induit est identique à celle de l'oscillateur et son amplitude proportionnelle à l'aimantation de l'échantillon. Une amplification à détection synchrone permet l'élimination d'une grande partie du bruit et délivre un signal continu. La sensibilité du signal est de l'ordre de $10^{-8} A m^2$ ($10^{-5} uem$). Les mesures par VSM requièrent un centrage de l'échantillon pour obtenir un signal maximum par rapport à l'amplitude de vibration. Les dimensions des échantillons ne peuvent guère excéder le millimètre.

Étude de plasmas générés par laser, soumis à des champs magnétique et électrique. Utilisation possible en techniques de dépôts.

Les propriétés de plasmas générés par laser ont été étudiées. Dans nos conditions expérimentales et quelques soient les éléments analysés (*Al, Cu, Fe, Mo, Pt*), la majorité des espèces évaporées sont des ions, d'énergies typiques de 60 eV à 100 eV . Du fait des mécanismes d'excitation et recombinaison, la constante adiabatique qui gouverne la détente du plasma (température, distribution angulaire) est de l'ordre de 1.2 , inférieure à la valeur $5/3$ caractéristique d'un gaz monoatomique.

Un fort confinement du plasma est obtenu sous un champ magnétique, B , jusqu'à 5 T . La température initiale du plasma alors déduite est de l'ordre de 10^5 K . Au premier ordre, la distribution énergétique n'est pas modifiée par le champ. Du fait de la forte densité du plasma résultant du confinement, les phénomènes de recombinaison ne sont pas négligeables.

Une méthode originale d'élaboration de dépôts directement structurés a été proposée, associant les effets combinés, sur un plasma, de champs magnétique et électrique.

Mots clefs : Dépôt laser pulsé, Élaboration de film, Plasma, Sonde de Langmuir, Mécanismes d'expansion, Champ magnétique, Confinement, Champ électrique, Gaine plasma, Température électronique, Énergie ionique, Distribution angulaire.

Study of laser generated plasmas, submitted to magnetic and electric fields. Possible use in deposition techniques.

The properties of laser generated plasmas have been studied. In the considered experimental conditions and for all studied elements (*Al, Cu, Fe, Mo, Pt*), the majority of the evaporated species are ions, with typical energies in the range $60\text{ eV} - 100\text{ eV}$. Due to excitation and recombination mechanisms, the adiabatic constant which governs expansion (temperature, angular distribution) is around 1.2 , less than the value $5/3$ expected for a monoatomic gas.

Strong plasma confinement is obtained under a magnetic field, B , of up to 5 T . The initial plasma temperature then deduced is of the order of 10^5 K . To first order, the ion energy distribution is not affected by the field. Due to the high plasma density resulting from confinement, recombination effects are significant.

An original approach for the preparation of directly structured materials has been proposed which associates the effects of magnetic and electric fields on plasmas.

Keywords : Pulsed laser deposition, Film preparation, Plasma, Langmuir probe, Expansion mechanisms, Magnetic field, Confinement, Electric field, Plasma sheath, Electronic temperature, Ionic energy, Angular distribution.

THÈSE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble 1

(arrêté ministériel du 30 mars 1992)

Discipline : **Physique**

Présentée et soutenue publiquement

par :

Clarisse DUCRUET

le 10 Juillet 2003

**Étude de Plasmas Générés par Laser,
Soumis à des Champs Magnétique et Électrique.
Utilisation Possible en Techniques de Dépôts.**

Composition du jury :

Yves Arnal

Alain Catherinot *Rapporteur*

Jean-Pierre Contour *Président*

Dominique Givord *Directeur de thèse*

Wladimir Marine *Rapporteur*

Laurent Ranno

Thèse préparée au **Laboratoire Louis Néel**
et au **Consortium de Recherches pour l'Émergence de Technologies Avancées**

Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) - Grenoble

B.P. 166, 25 avenue des Martyrs, 38042 Grenoble Cedex 09

CHAPITRE 5 :

DU PLASMA AU DÉPÔT

| | | |
|------------|--|------------|
| I | IDÉE DE BASE | 141 |
| II | MONTAGE ET CONDITIONS EXPÉRIMENTALES | 144 |
| II.1 | ARRANGEMENT EXPÉRIMENTAL | 144 |
| II.2 | ÉLABORATION DES SUBSTRATS | 145 |
| II.3 | OPTIMISATION DES CONDITIONS DE DÉPÔT | 148 |
| III | CARACTÉRISATION DU PLASMA - ANALYSE DU MÉCANISME DE DÉPÔT | 149 |
| III.1 | SIGNAUX $I(t)$ ET $I(V_b)$ | 149 |
| III.2 | VARIATION DU TAUX DE DÉPÔT AVEC LA TENSION APPLIQUÉE | 153 |
| III.2.1 | MÉCANISMES DE COLLECTION | 153 |
| III.2.2 | APPLICATION AUX PLASMAS DE FER ET PLATINE | 155 |
| IV | ÉLABORATION ET CARACTÉRISATION DE DÉPÔTS DIRECTEMENT STRUCTURÉS | 156 |
| IV.1 | CARACTÉRISATION QUALITATIVE EN MICROSCOPIE | 157 |
| IV.2 | TAUX D'ABLATION | 160 |
| V | CONCLUSION | 161 |
| VI | RÉFÉRENCES | 161 |

La meilleure compréhension de l'action d'un champ magnétique sur les plasmas PLD, comme celle des mécanisme de collection par une sonde de Langmuir, nous ont amenés à l'idée de combiner les effets d'un champ magnétique et d'un champ électrique pour préparer des dépôts directement structurés. Je présente les grandes lignes de cette approche dans la première partie de ce chapitre. Je décris ensuite les premières réalisations de tels dépôts.

I IDÉE DE BASE

À l'énergie cinétique, E_c , acquise par les ions lors de l'expansion du plasma, on peut faire correspondre une énergie électrostatique qV_i . Supposant les ions monochargés, la tension représentative de l'énergie cinétique des ions est $V_i = E_c / e$. Cette tension est typiquement comprise entre $20 V$ et $200 V$. Une tension supérieure à $+200 V$ est donc nécessaire pour repousser tous les ions qui se dirigent vers un substrat orienté perpendiculairement à leur direction de déplacement. Par l'application de telles tensions à des lignes ou des plots métalliques gravés sur un substrat, on peut imaginer de réaliser des dépôts directement structurés. Une telle configuration ne permet cependant pas d'éviter le dépôt de neutres sur l'ensemble de la surface du substrat.

Nous avons abordé la réalisation de dépôts structurés par l'utilisation d'une autre configuration, schématisée sur la Fig. 1. Le substrat métallique est une plaque carrée dont les côtés valent $l = 8 mm$. Le substrat est orienté perpendiculairement à la cible (nous utilisons l'expression « substrat // » et « substrat \perp » par référence à l'orientation de la cible, dans la suite de ce chapitre) et donc parallèlement au champ magnétique. L'un des côtés du carré est parallèle à l'axe du champ. Le substrat est centré sur l'axe d'expansion de façon à baigner dans le plasma

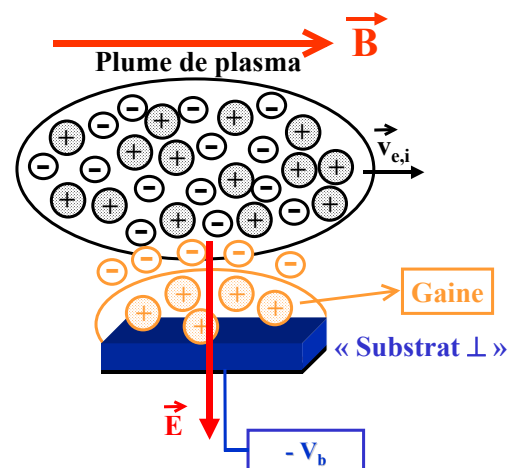


Fig. 1 : Dépôt laser pulsé sous champs magnétique et électrique.

lors de l'expansion. La trajectoire des ions peut être influencée par l'application d'une tension, V_b , dans la mesure où ceux-ci se trouvent au sein de la gaine d'épaisseur, D . Pour déterminer les tensions requises, considérons un ion qui pénètre dans la gaine. Soit v_i , sa vitesse, parallèle au substrat. Supposons tout d'abord que sa trajectoire n'est pas affectée par

la tension appliquée. Le temps passé au sein de la gaine est de $t = l/v_i$. Ce temps doit être comparé au temps t' requis pour traverser la gaine sous l'effet du champ électrique qui y règne. L'ion est soumis à une accélération $\gamma = q \times E / m$, et l'on déduit $t' = \sqrt{2D/\gamma}$.

La vitesse typique des ions obtenue aux chapitres précédents est de 10^4 m s^{-1} . Le temps t est donc de l'ordre de 10^{-6} s . D , déduit de la relation (6) du Chapitre 3 (relation de Child [1] p. 57), est tracé sur la Fig. 2 pour une densité de plasma supposée égale à 10^{19} m^{-3} et une température supposée égale à 10^4 K . D'un point de vue physique, la valeur minimale de D est obtenue pour $V_b = V_p \approx -3 \text{ V}$, valeur du potentiel plasma (voir Chapitre 4 p. 121 et p. 126). Elle est alors de $4.5 \mu\text{m}$. Lorsque la tension négative V_b varie jusqu'à -100 V , D augmente jusqu'à $60 \mu\text{m}$. Supposons une tension $V_b = -10 \text{ V}$, le champ électrique dans la gaine est de l'ordre de $E = V_b/D \approx 10^6 \text{ V m}^{-1}$ et l'accélération déduite vaut $\gamma = 1.7 \times 10^{12} \text{ m s}^{-2}$. On en déduit $t' = 3.5 \times 10^{-9} \text{ s}$. t' est très inférieur à t et l'on peut considérer que tous les ions qui pénètrent dans la gaine atteignent le substrat.

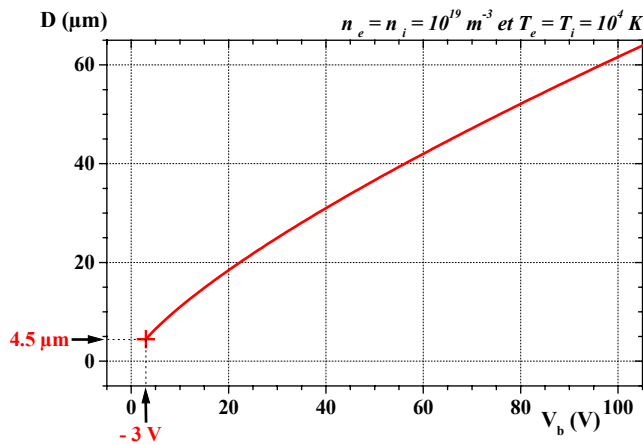


Fig. 2 : Variation de l'épaisseur de gaine D en fonction de la valeur absolue du potentiel appliqué, d'après la relation de Child (p. 57). On suppose une densité de 10^{19} m^{-3} et une température de 10^4 K .

Dans cette discussion, nous avons négligé l'effet de confinement du champ magnétique. Dans un champ de 0.8 T , le terme $v_i \wedge B$, proportionnel à la force de Lorentz, est de l'ordre de $2.5 \times 10^3 \text{ V m}^{-1}$. Il est très inférieur au champ électrique que nous venons de déduire et l'hypothèse faite est donc justifiée. Par ailleurs, nous avons supposé que les ions entrent dans la gaine avec une vitesse nulle. En réalité leur vitesse transverse, v_{\perp} , est de l'ordre de $3 \times 10^3 \text{ m s}^{-1}$. Sous une tension appliquée négative, le temps requis pour atteindre le substrat est donc encore moindre que celui que nous avons évalué.

Intéressons-nous maintenant à l'effet de l'application d'une tension positive. La tension représentative de l'énergie cinétique associée à $v_{\perp} = 3 \times 10^3 \text{ m s}^{-1}$ est de 2.5 V . De façon plus générale, la tension requise pour repousser les ions est environ 10 fois inférieure à celle requise lorsque le substrat fait face à la direction d'expansion. Pour les repousser tous, une tension inférieure à $+ 100 \text{ V}$ doit suffire.

L'ensemble de cette discussion, nous suggère que, par application de tensions adéquates à des lignes ou plots métalliques dessinés sur un substrat, un dépôt sélectif d'ions peut être réalisé. Il reste à évaluer le dépôt des atomes neutres dans une telle configuration. La densité du plasma sous champ magnétique est de l'ordre de 10^{19} m^{-3} , environ 10 fois supérieure à celle obtenue en champ nul. Puisque le taux d'ionisation initiale est au minimum de 50% , le taux d'atomes neutres au sein du plasma est inférieur à 5% . Les atomes ne peuvent atteindre un substrat parallèle à la direction d'expansion que par collisions avec les ions et atomes du plasma. Le temps caractéristique des collisions atome-atome et atome-ion est $> 10^{-3} \text{ s}$ [2]. Pendant le temps t , de l'ordre de 10^{-6} s , ces effets sont négligeables.

Notons que les mécanismes que nous venons de décrire peuvent être rapprochés de ceux en jeu dans la technique d'implantation ionique appelée PIII (Plasma Immersion Ion Implantation). En immergeant une cible polarisée négativement ($\approx -10 \text{ kV}$) au sein d'un plasma de densité typique 10^{13} m^{-3} , on peut y implanter les ions du plasma. Cette technique est par exemple utilisée en micro-électronique pour doper des wafers de larges surfaces [3]. Elle permet aussi de préparer des films minces ($\approx 2 \text{ cm}$ de diamètre). Toutefois, les tensions appliquées sont de quelques kV , donc bien supérieures à celles que nous utilisons pour nos dépôts [4]. Un champ magnétique faible ($< 1 \text{ mT}$) est parfois utilisé pour augmenter l'efficacité et l'uniformité de l'implantation en augmentant le taux d'ions à l'entrée de la gaine [5] [6].

II MONTAGE ET CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

II.1 Arrangement expérimental

De premiers dépôts, non structurés, ont été réalisés sur de simples plaques métalliques.

Les dépôts structurés ont été réalisés en utilisant des substrats sur lesquels des peignes métalliques avaient été gravés par lithographie. Initialement, des peignes uniques ont été réalisés, nous avons ensuite préparé des doubles peignes imbriqués, selon la géométrie qui est présentée sur la Fig. 3. Les 2 peignes sont isolés l'un par rapport à l'autre, la tension appliquée à chaque peigne peut être variée de façon indépendante.

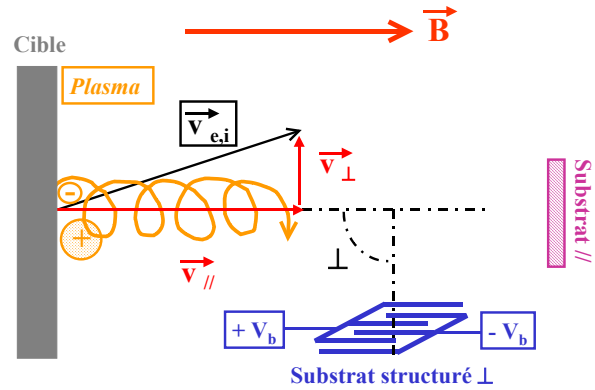


Fig. 3 : Géométrie du système dans son ensemble.

Pour recevoir les substrats, nous avons fabriqué un porte-substrat en téflon, permettant de positionner une plaque de dimensions typiques de l'ordre du cm^2 parallèlement à la direction d'expansion. Ce porte-substrat, schématisé sur la Fig. 4, est un cylindre dans lequel un évidement a été aménagé de sorte à obtenir deux surfaces planes constituant une forme de L. La partie du L parallèle à la surface de la cible est destinée à recevoir les substrats // et la partie perpendiculaire du L est destinée à recevoir les substrats ⊥. L'extrémité du cylindre, du côté de la face parallèle à la cible, de diamètre 36 mm , est percée de deux trous de 4 mm de diamètre autorisant le passage des fils de polarisation des peignes. Trois trous taraudés à l'arrière permettent de fixer le porte-substrat sur la canne de translation-rotation du bâti d'ablation (voir Chapitre 1 p. 18).

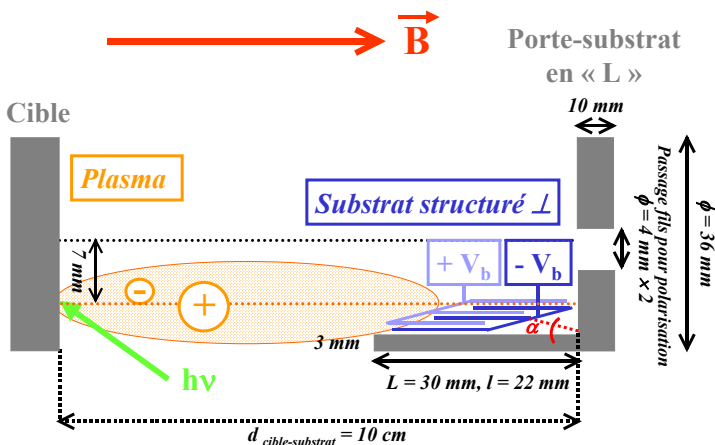


Fig. 4 : Représentation schématique du porte-substrat en L utilisé lors des dépôts perpendiculaires. La distance entre la cible et la partie du porte-substrat parallèle à la surface de la cible est de 10 cm . Le porte-substrat peut être incliné d'un angle α par rapport à l'angle d'expansion.

La tension de polarisation est amenée aux peignes en utilisant le même montage que celui utilisé précédemment pour polariser la sonde de Langmuir (voir Chapitre 3 Paragraphe II p. 63). Les amenées de courant sont soit des fils de cuivre gainés d'un matériau isolant, de diamètre 0.3 à 0.5 mm, soudés à l'étain sur les contacts ; soit des fils d'aluminium de 25 μm de diamètre, micro-soudés (ultra-sons) sur les électrodes. Deux alimentations stabilisées à courant continu permettent de varier la tension de $+80$ V à -80 V. Les courants détectés par chaque peigne sont mesurés en continu pendant le dépôt avec l'oscilloscope à 4 voies déjà présenté. Si le moindre court-circuit entre les peignes se produit, les courants détectés s'annulent.

II.2 Élaboration des substrats

Les substrats ont été réalisés grâce aux techniques de microfabrication¹. Il s'agit d'obtenir, sur un support isolant, deux électrodes en peignes imbriqués (Fig. 5). Les lignes des peignes ont une longueur L et une largeur l . La distance entre deux lignes voisines de chaque électrode est notée d .

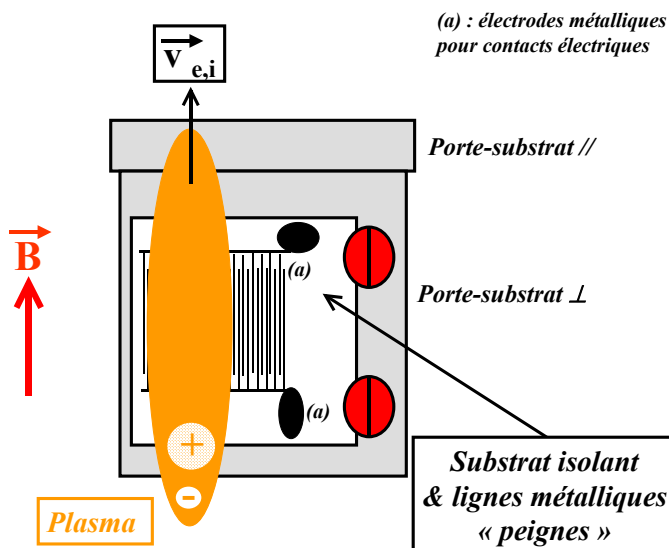


Fig. 5 : Vue de dessus schématique représentant les substrats \perp gravés et leur disposition par rapport à la plume de matière évaporée. Lors des dépôts, les lignes sont placées soit perpendiculairement au champ magnétique soit parallèlement comme sur le schéma.

Les techniques de microfabrication permettent de dupliquer une grande variété de motifs semblables à celui de la Fig. 5, en variant les dimensions l et d . Le principe d'élaboration de tels substrats est décrit sur la Fig. 6 (p. 147). On dispose d'un masque (M),

¹ Les dispositifs utilisés font partis du CRTBT et de la plate-forme Nanofab de ce laboratoire.

calque sur lequel est imprimé le motif que l'on désire reproduire. Un dépôt métallique (1) de 100 à 150 nm d'épaisseur est évaporé sur un substrat (S) isolant. Au préalable, une sous-couche d'accrochage de 5 à 10 nm (Ti ou WTi) est déposée. Une résine photosensible positive S1818 est étalée à 4000 tours / minutes et recuite à 115 °C pendant une minute (2). Son épaisseur est alors d'environ 2 μm. Le masque (M) est plaqué sur l'échantillon et l'ensemble est soumis à un rayonnement UV de 40 mJ cm⁻². La résine non masquée est insolée. L'échantillon est immergé dans une solution révélatrice de la résine insolée, puis abondamment rincée dans de l'eau désionisée. L'ensemble est recuit 1 min à 110 °C pour durcir la résine non insolée qui reproduit le motif du masque. L'échantillon peut alors être immergé dans une solution chimique destinée à attaquer le métal non protégé. Une telle attaque chimique trouve sa limitation pour des motifs de largeur *l* trop faible, à cause de la surgravure à la base (Fig. 6). Une attaque ionique (bombardement d'ions Ar⁺) est une alternative préférable. Enfin, la résine protectrice est dissoute dans de l'acétone et le motif du masque est dupliqué sur un matériau métallique.

Une deuxième approche consiste à effectuer un « lift off » (Fig. 6). Sur un substrat isolant, on étale une résine photosensible négative (ce qui sera insolé au rayonnement UV restera après développement). Une fois le moule en résine obtenu, on évapore le matériau métallique, puis on nettoie avec de l'acétone la résine résiduelle. La difficulté de cette dernière méthode est qu'un dépôt sur les flancs verticaux du moule en résine limite l'élimination de celle-ci (Fig. 6).

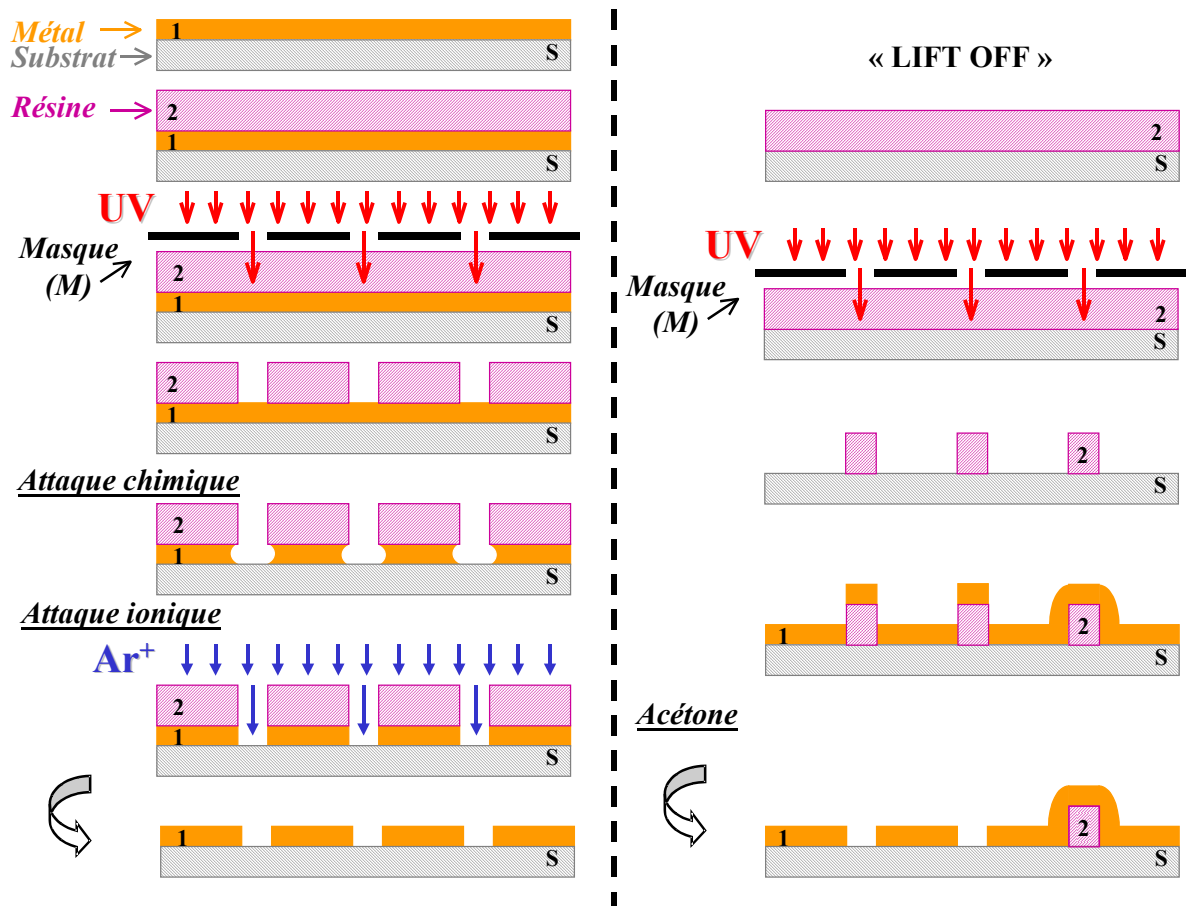


Fig. 6 : Techniques de microfabrication utilisées pour élaborer les motifs en forme de peignes imbriqués, à gauche avec une résine photosensible positive, à droite avec une résine photosensible négative (« lift off »).

Nous avons travaillé avec les motifs dont les dimensions élémentaires sont présentées dans le Tab. 1. Dans la pratique, le choix des métaux constituant ces motifs est imposé par les techniques de microfabrication à notre disposition (adéquation avec attaque chimique ou ionique). Les motifs de plus grandes dimensions ($l > 100 \mu m$) étaient en cuivre, fabriqués à partir de plaques de circuits imprimés, insolées à travers un masque puis plongées dans une solution chimique de perchlorure de fer révélant les motifs (partie gauche de la Fig. 6). Aux plus petites dimensions ($l \leq 100 \mu m$), nous avons préparé des substrats gravés d'or sur Si_3N_4 par la technique de lift off. Avec cette technique, nous avons dû faire face à des problèmes d'adhérence de la couche métallique ainsi qu'à des problèmes de court-circuits entre les peignes. Nous avons finalement utilisé des substrats gravés de Pt sur pyrex, obtenus avec une résine photosensible positive, suivie d'attaque ionique.

| L (mm) | l (μm) | d (μm) |
|----------|-----------------------|-----------------------|
| 1 | 300 | 300 |
| 1 | 200 | 200 |
| 1 | 100 | 50 |
| 1 | 50 | 50 |

Tab. 1 : Dimensions des lignes constituant les peignes. Au total ces motifs sont des carrés de l'ordre de 15 à 20 mm de côté.

II.3 Optimisation des conditions de dépôt

Les paramètres expérimentaux essentiels sont identiques à ceux utilisés lors de la caractérisation des plasmas en champ magnétique nul. En particulier, la densité d'énergie vaut 0.9 J cm^{-2} . La distance entre la cible et le centre du substrat est de 8 - 9 cm (Fig. 4 p. 144).

Nous avons constaté que le taux de dépôt dépendait beaucoup du positionnement du substrat. Ce phénomène résulte directement du caractère localisé du plasma et du fait que le substrat, dans l'orientation dite \perp , est vu du côté du plasma sous un angle solide réduit. Le positionnement du substrat a été optimisé pour augmenter les taux de dépôt. Nous avons déjà indiqué (voir Chapitre 1) que le plasma n'est pas centré sur l'axe de la chambre, mais décalé de 7 mm vers le bas. Le porte-substrat a été dessiné de façon que le substrat soit aussi décalé de 7 mm par rapport à cet axe (voir Fig. 4 p. 144). Avant chaque mesure, la tige porte-substrat a été tournée autour de son axe jusqu'à atteindre le taux de dépôt maximal, représenté par le courant ionique mesuré avec une plaque métallique portée à une tension de -50 V (Fig. 7). La position optimale trouvée ($\theta = 275^\circ$) était reproductible, elle correspond à une situation pour laquelle le plan du porte-substrat est pratiquement parallèle au sol de la salle d'expérience (Fig. 8). C'est celle que l'on peut prévoir sur la base des arguments ci-dessus.

Nous avons aussi déterminé la dépendance du taux de dépôt en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué. Un maximum très marqué est obtenu pour $B = 0.8 \text{ T}$ (Fig. 9). Notre interprétation de cet effet est que d'un côté, sous les champs les plus intenses, le plasma très confiné tend à échapper au substrat, d'un autre côté, comme nous l'avons montré tout au long de cette étude, le confinement et le taux de dépôt sont faibles en champ nul. La balance entre ces 2 effets, explique le maximum observé sous 0.8 T .

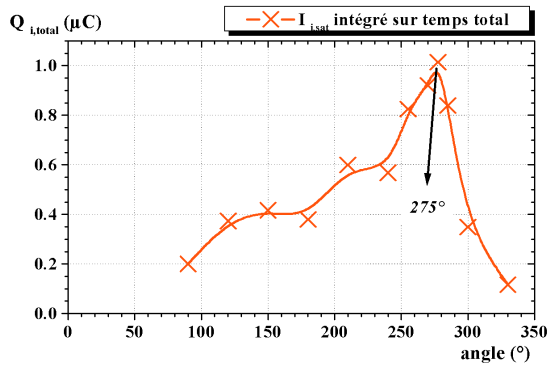


Fig. 7 : Optimisation de la position angulaire du substrat perpendiculaire. La position déterminée est telle que le plan du substrat est pratiquement parallèle au sol. Fe^+ et $V_b = -50 V$.

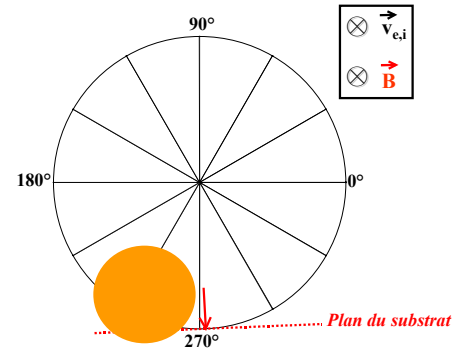


Fig. 8 : Vue de face de la position optimale du substrat. Le cercle plein correspond à l'image du spot laser sur la cible.

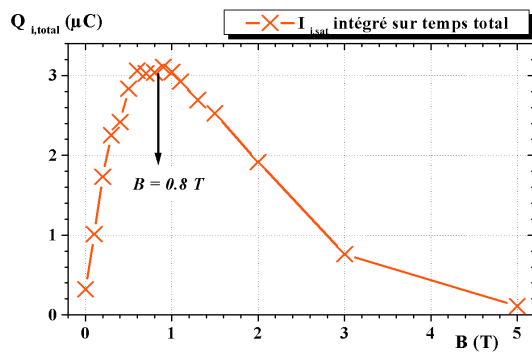
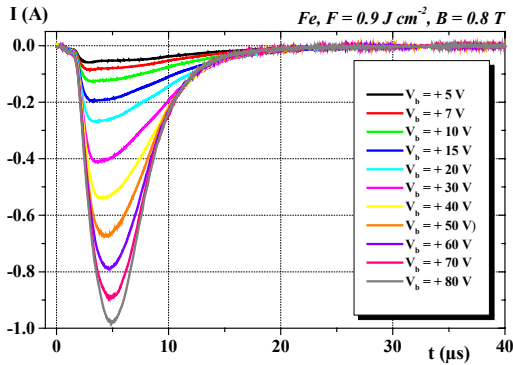


Fig. 9 : Optimisation de la valeur de l'induction magnétique. Fe^+ et $V_b = -50 V$.

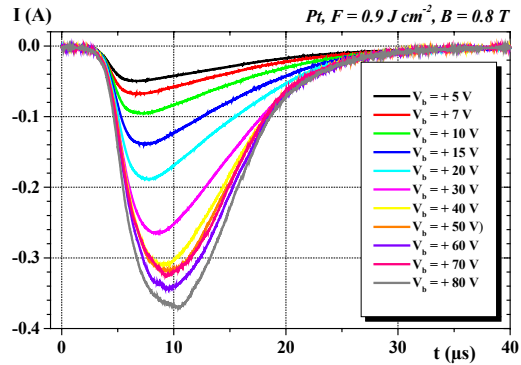
III CARACTÉRISATION DU PLASMA - ANALYSE DU MÉCANISME DE DÉPÔT

III.1 Signaux $I(t)$ et $I(V_b)$

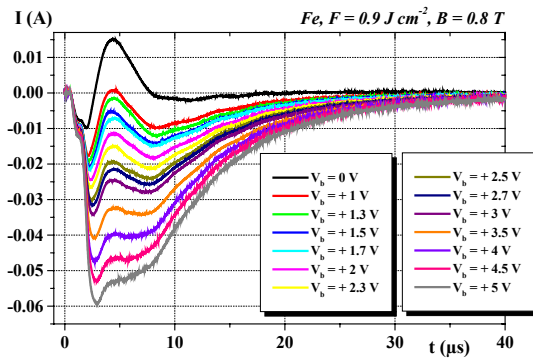
Dans les conditions expérimentales décrites ci-dessus, nous avons réalisé des mesures à l'aide d'une sonde de Langmuir de $8 \times 8 mm$, placée sur le porte-substrat en téflon, en position \perp (Fig. 4 p. 144). Les signaux $I(t)$ pour les plasmas de fer et de platine sont présentés sur les Fig. 10 et Fig. 11 (p. 150). Les graphes (a) et (b) correspondent à $V_b > 0$ et les graphes (c) à $V_b < 0$. Les caractéristiques $I(V_b)$ des plasmas de fer et platine, déduites de ces mesures de temps de vol, sont présentées sur les Fig. 12 (p. 151) et Fig. 13 (p. 152), à des temps caractéristiques des systèmes.



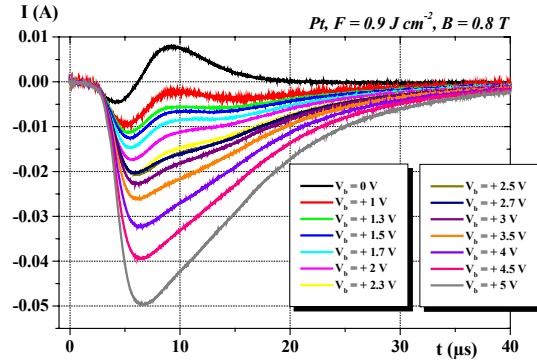
(a)



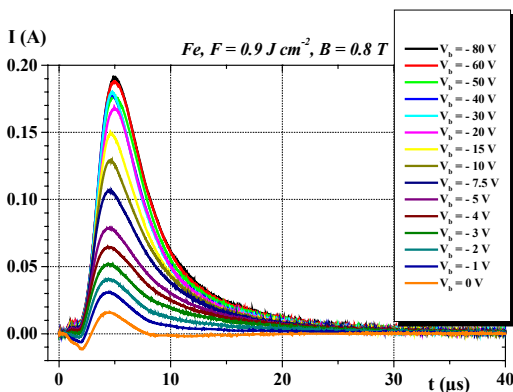
(a)



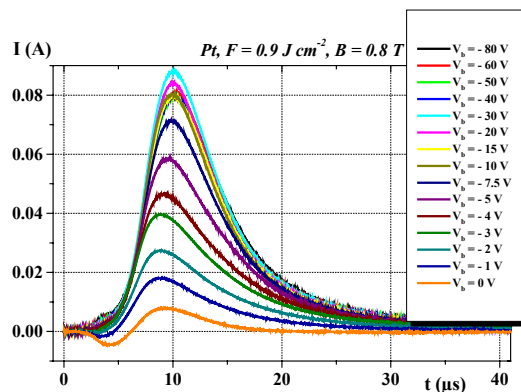
(b)



(b)



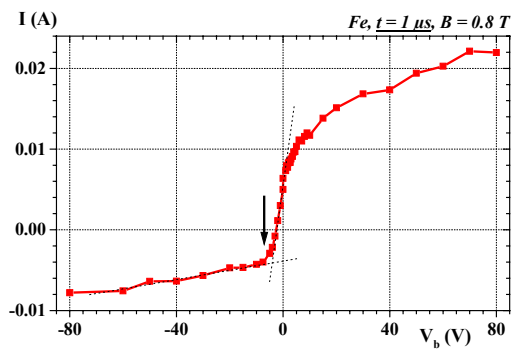
(c)



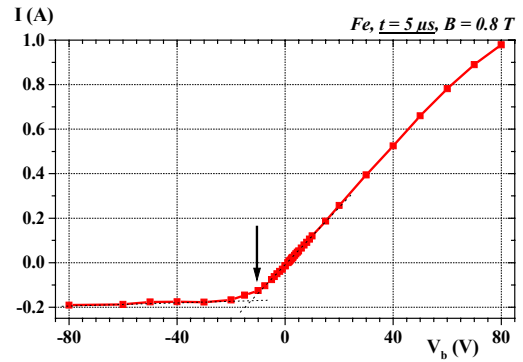
(c)

Fig. 10 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir \perp immergée dans un plasma de fer pour V_b variant de $+80 \text{ V}$ à -80 V , $B = 0.8 \text{ T}$, $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$, $8.5 < d_{\text{cible-sonde}} < 9.5 \text{ cm}$ et $M = 100 \mu\text{s}$.

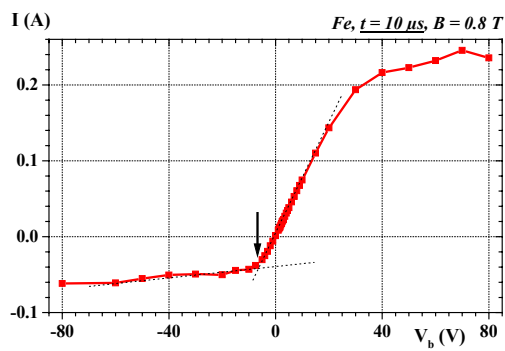
Fig. 11 : Signaux recueillis par la sonde de Langmuir \perp immergée dans un plasma de platine pour V_b variant de $+80 \text{ V}$ à -80 V , $B = 0.8 \text{ T}$, $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$, $8.5 < d_{\text{cible-sonde}} < 9.5 \text{ cm}$ et $M = 100 \mu\text{s}$.



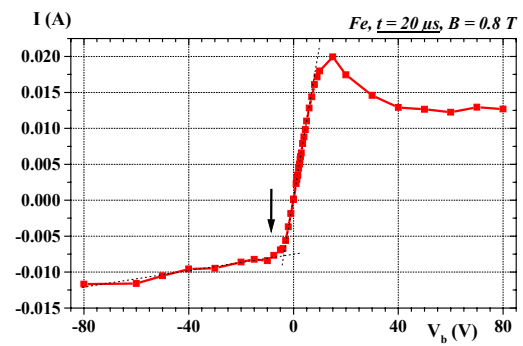
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 12 : $I(V_b)$ pour le plasma Fe, en sonde \perp , à des temps de vol de (a) $1 \mu\text{s}$, (b) $5 \mu\text{s}$, (c) $10 \mu\text{s}$ et (d) $20 \mu\text{s}$. $B = 0.8 \text{ T}$ et $F = 0.9 \text{ J cm}^{-2}$.

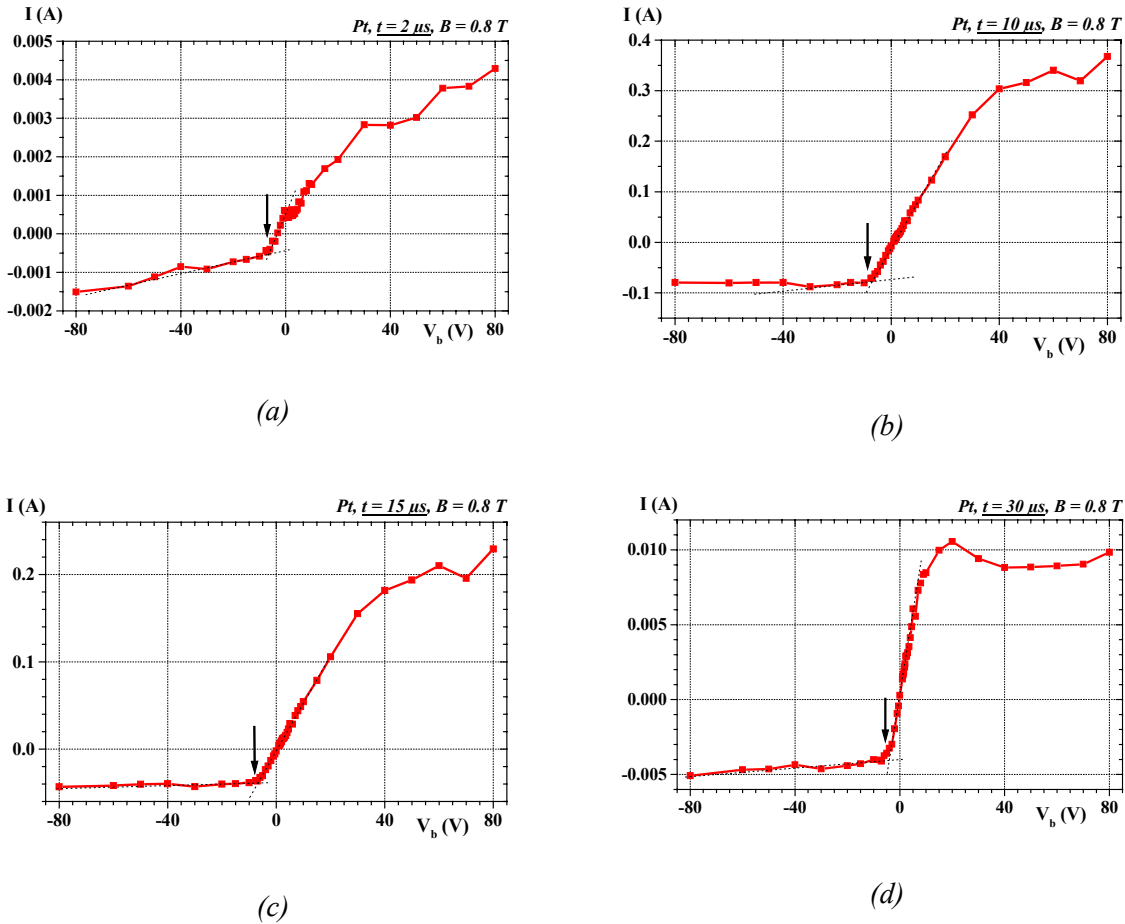


Fig. 13 : $I(V_b)$ pour le plasma Pt, en sonde \perp , à des temps de vol de (a) $2 \mu s$, (b) $10 \mu s$, (c) $15 \mu s$ et (d) $30 \mu s$. $B = 0.8 T$ et $F = 0.9 J cm^{-2}$.

Pour l'essentiel, ces courbes sont similaires à celles déjà obtenues au Chapitre 4. Cependant, on remarque les différences suivantes : **(1)** en tension négative, le courant ionique tend à se saturer à des valeurs relativement modestes de la tension appliquée. L'interprétation de ce phénomène est immédiate. Les électrons piégés par le champ tendent à éviter la sonde. On atteint donc facilement une situation où seul le courant ionique est détecté. C'est l'opposé de la situation décrite au Chapitre 4 pour un substrat \parallel . **(2)** Le courant ionique ne se sature pas complètement, mais il tend à augmenter avec la tension. Nous discutons cet effet au paragraphe suivant. **(3)** Un fort courant électronique est mesuré en tension positive qui s'interprète sur la base du même types d'arguments que en **(1)**. **(4)** Aux temps longs, le courant de type électronique présente un maximum pour une certaine valeur de la tension positive appliquée (Fig. 12 (d) et Fig. 13 (d)). Cet effet est une manifestation d'un rétrécissement de la distribution temporelle du courant électronique $I_e(t)$, visible sur les

Fig. 10 (a) et Fig. 11 (a) (p. 150), qui se produit aux fortes tensions positives appliquées au substrat. Nous l'attribuons à l'accélération des électrons résultant de l'application de cette tension. Cette interprétation suggère une fois encore qu'une tension positive n'est pas totalement écrantée sur l'épaisseur de gaine.

III.2 Variation du taux de dépôt avec la tension appliquée

III.2.1 Mécanismes de collection

Le mécanisme de collection des ions dans la configuration où la sonde est perpendiculaire à la cible est schématisé sur la Fig. 14. En l'absence de champ électrique, les ions décrivent des orbites circulaires de rayon de Larmor R_L (sous $B = 0.8 T$, $R_L = 2 mm$ pour Fe^+ et $R_L = 4 mm$ pour Pt^+). Pendant le temps t où ils sont à proximité de la sonde, ils décrivent une fraction de la circonférence totale du cercle (voir Fig. 14). Supposant que la longueur de la sonde est $l = 1 cm$ et que $v_i = 10^4 m s^{-1}$ pour les ions Fe^+ , on déduit $t = 5 \mu s$; avec $v_i = 0.5 \cdot 10^4 m s^{-1}$ pour les ions Pt^+ , on déduit $t = 10 \mu s$.

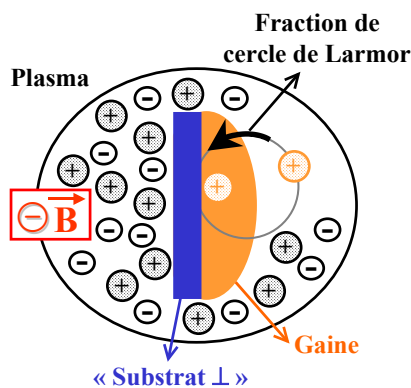


Fig. 14 : Mécanisme de collection des ions sous champ magnétique par une sonde, ou un substrat, de type perpendiculaire.

Nous avons expliqué, au début de ce chapitre, que tout ion au sein de la gaine se dépose finalement sur la sonde. Se déposent donc, tous les ions qui entrent directement dans la gaine et tous les ions qui pénètrent au sein de la gaine, du fait de leur parcours du cercle de Larmor. Soit $N_{i,1}$ et $N_{i,2}$ le nombre d'ions de chaque type. Si l'on suppose la densité de plasma constante, le nombre $N_{i,1}$ d'ions qui entrent directement dans la sonde est simplement

proportionnel à l'épaisseur de gaine, D . Supposant que D est donné par la formule de Child² [1] (voir Chapitre 3 p. 57), on obtient :

$$N_{i,1} = \alpha D = \alpha \frac{\sqrt{2}}{3} \lambda_D \left(\frac{2eV}{k_B T_e} \right)^{3/4}, \quad (1)$$

où α est un paramètre de normalisation et tous les autres paramètres ont déjà été définis.

Le nombre d'ions qui entrent dans la gaine du fait de leur parcours du cercle de Larmor est simplement proportionnel à la portion de cercle de Larmor parcourue pendant le temps où les ions sont au voisinage de la sonde. La longueur, l_L , parcourue sur le cercle de Larmor est :

$$l_L = v_{\perp} t, \quad (2)$$

et la circonférence, L_L , du cercle de Larmor est :

$$L_L = \frac{2\pi m_i v_{\perp}}{eB}. \quad (3)$$

La fraction du cercle parcourue est donc :

$$f_L = \frac{eBl}{2\pi m_i v_i}, \quad (4)$$

où v_i est la vitesse le long de l'axe d'expansion et l la longueur du substrat.

Une fraction f_L des ions situés à une distance $d < R_L$ de la gaine sont collectés. Les ions à une distance $d > R_L$ ne sont pas collectés. On en déduit que :

$$N_{i,2} = \alpha f_L R_L. \quad (5)$$

Le nombre total d'ions collectés, N_i est la somme du terme $N_{i,1}$ variant comme $V^{3/4}$ et du terme, $N_{i,2}$, indépendant de la tension.

² Normalement, D dépend du potentiel de gaine, V . En première approximation, ce dernier est équivalent à V_b .

III.2.2 Application aux plasmas de fer et platine

La variation du courant, intégré sur le temps de vol total, en fonction d'une tension négative appliquée est tracée, *en valeur absolue*, sur la Fig. 15 pour le plasma *Fe* et sur la Fig. 16 pour le plasma *Pt*. Au-delà de 10 V environ, aucun électron n'est collecté et le courant mesuré est directement proportionnel au nombre d'ions. À plus faibles tensions, le courant mesuré ne peut être relié à N_i du fait d'une contribution électronique résiduelle. Nous savons que le courant ionique ne doit pas varier brutalement avec la tension et nous avons donc extrapolé la variation observée sous forte tension. Le nombre d'ions par seconde atteignant le substrat a alors été déduit du courant mesuré selon l'expression : $N_i = F_{rep} \int_t (I_i / e) dt$, où $F_{rep} = 10\text{ Hz}$ représente la fréquence de répétition du laser. Il est représenté sur la Fig. 17 pour *Fe* et sur la Fig. 18 pour *Pt*.

À partir des formules (1) et (5) ci-contre, le nombre d'ions peut-être évalué, en gardant α comme un paramètre libre. Les valeurs numériques utilisées sont les suivantes :

♦ **Fe** : $\lambda_D = 2\ \mu\text{m}$, $n_e = 10^{19}\ \text{m}^{-3}$, $T_e = 10^4\ \text{K}$, $R_L = 2\ \text{mm}$, $f_L = 0.20$,

d'où $N_{i,1} = \alpha \times 1.77 \times 10^{-6} V_b^{3/4}$ et $N_{i,2} = \alpha \times 4 \times 10^{-4}$. On prévoit : $\alpha = 10^{17} - 10^{18}$.

♦ **Pt** : $\lambda_D = 2\ \mu\text{m}$, $n_e = 10^{19}\ \text{m}^{-3}$, $T_e = 10^4\ \text{K}$, $R_L = 4\ \text{mm}$, $f_L = 0.11$,

d'où $N_{i,1} = \alpha \times 1.77 \times 10^{-6} V_b^{3/4}$ et $N_{i,2} = \alpha \times 4.4 \times 10^{-4}$. On prévoit : $\alpha = 10^{17} - 10^{18}$.

Les courbes déduites sont comparées aux variations expérimentales sur les Fig. 17 et Fig. 18.

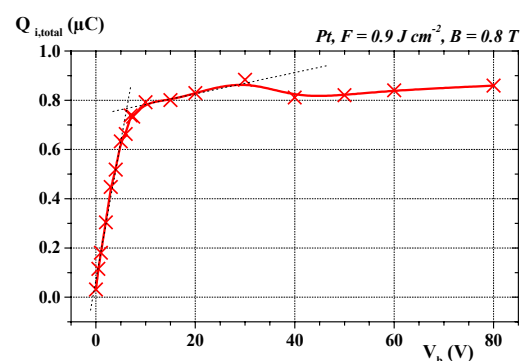
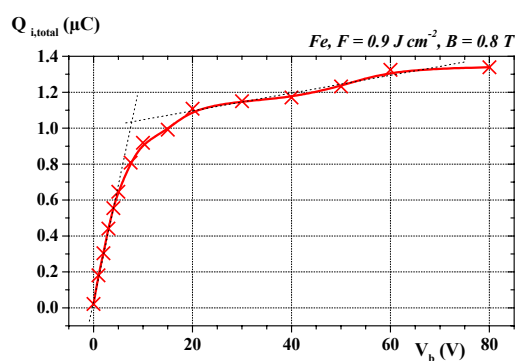


Fig. 15 : $I_i(V_b)$ expérimental intégré sur le temps total pour le plasma de fer dans la région de $V_b < 0$.

Fig. 16 : $I_i(V_b)$ expérimental intégré sur le temps total pour le plasma de platine dans la région de $V_b < 0$.

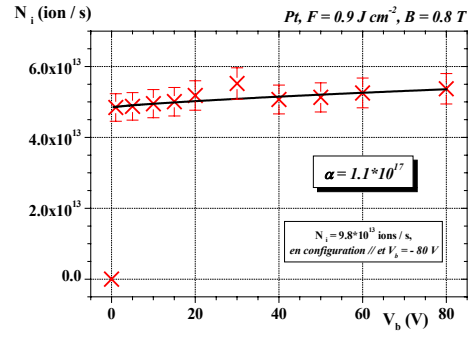
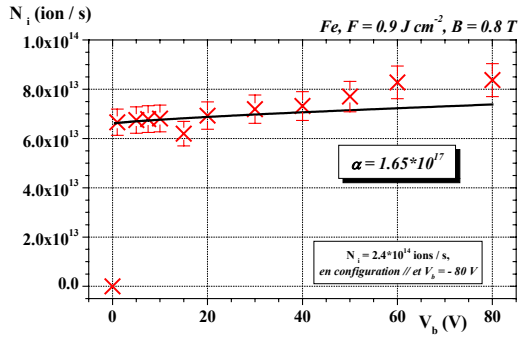


Fig. 17 : Comparaison N_i expérimental (croix) et N_i calculé (ligne), en fonction de V_b , dans le zone de $V_b < 0$ (plasma Fe).

Fig. 18 : Comparaison N_i expérimental (croix) et N_i calculé (ligne), en fonction de V_b , dans le zone de $V_b < 0$ (plasma Pt).

Sur les Fig. 17 et Fig. 18, à la valeur maximale de la tension appliquée, la contribution indépendante de la tension et celle variant avec la tension sont du même ordre de grandeur. La contribution indépendante de la tension est liée à la fraction du cercle de Larmor parcourue pendant que le plasma passe près du substrat. L'utilisation d'un substrat plus long permettrait d'augmenter f_L jusqu'à une valeur supérieure à 1. La contribution constante devrait alors largement dominer. Lorsque f_L est supérieur à 1, le taux d'ions collectés est proportionnel au rapport de R_L à la dimension transversale du plasma. Il est de l'ordre de 20 % dans nos conditions expérimentales. Qualitativement, les conditions optimales devraient être atteintes lorsque R_L est de l'ordre de grandeur de la dimension du spot laser. Le diamètre du spot est de $5 \times 7 \text{ mm}$, le champ magnétique correspondant est de 0.3 T pour Fe et 0.5 T pour Pt. La longueur de substrat alors requise pour que $f_L > 1$ est de 12 cm .

IV ÉLABORATION ET CARACTÉRISATION DE DÉPÔTS

DIRECTEMENT STRUCTURÉS

Des dépôts directement structurés ont été préparés sur des substrats \perp (Paragraphe II.2 p. 145). Durant le dépôt, les substrats ont été orientés de façon que les lignes lithographiées soient soit parallèles soit perpendiculaires à la direction d'expansion (Fig. 5 p. 145). L'un des peignes était soumis à une polarisation négative de -20 V ou -80 V , l'autre à une polarisation positive de $+20 \text{ V}$, $+40 \text{ V}$ ou $+80 \text{ V}$. La durée typique de ces dépôts était comprise entre

30 minutes à 2 heures. Les substrats ont ensuite été observés en microscopie optique et en microscopie électronique à balayage (MEB, voir Annexe B p. 187).

Certains dépôts ont été réalisés sur des substrats dont l'axe normalement parallèle à l'axe d'expansion était désorienté d'un angle α de 5° , à l'opposé de la cible (Fig. 4 p. 144). Cette configuration a été choisie dans le but de limiter le dépôt éventuel d'espèces neutres. Dans cette configuration, on note une nette diminution du taux de dépôt des ions, due à l'effet d'ombre de la tranche du substrat.

IV.1 Caractérisation qualitative en microscopie

Un dépôt de fer, d'une durée de 30 minutes, a été réalisé sur un substrat gravé de deux peignes imbriqués (Fig. 19). Chaque peigne était formé de lignes de cuivre de $300\ \mu\text{m}$ de large, au pas de $1200\ \mu\text{m}$. Durant le dépôt, les lignes étaient orientées parallèlement à la direction d'expansion. Le potentiel positif appliqué était de $+20\ \text{V}$ et le potentiel négatif était de $-80\ \text{V}$. La microscopie optique révèle que les lignes soumises au potentiel positif gardent après dépôt, la couleur jaune-orange caractéristique du cuivre, les lignes soumises au potentiel négatif ont pris au contraire une couleur grisée. Ces observations suggèrent immédiatement que le fer s'est préférentiellement déposé sur ces dernières lignes.

Un autre dépôt de fer (60 minutes) a été réalisé sur un substrat gravé de peignes constitués de lignes d'or plus fines : $100\ \mu\text{m}$ de large au pas de $300\ \mu\text{m}$. Le substrat était incliné de 5° pour éviter tout dépôt d'espèces neutres. Les potentiels appliqués étaient de $\pm 20\ \text{V}$ (Fig. 20). De la même manière que précédemment, des observations en microscopie optique montrent que le peigne soumis à la tension positive garde sa couleur d'origine (gris clair) alors que celui soumis à la tension négative est recouvert de fer (gris foncé).

Un dépôt de fer a été réalisé en orientant les lignes de cuivre (largeur $200\ \mu\text{m}$, pas $800\ \mu\text{m}$) perpendiculairement à la direction d'expansion. Le potentiel positif appliqué était de $+40\ \text{V}$ et le potentiel négatif était de $-80\ \text{V}$. La microscopie optique montre que le dépôt c'est préférentiellement effectué sur les lignes polarisées négativement. Après 15 minutes cependant, un court-circuit s'est finalement produit, en un point très localisé du substrat, qui peut être attribué à du dépôt se faisant entre les lignes, comme le montre l'image MEB de la Fig. 21. L'analyse chimique de ce court-circuit révèle qu'il est constitué de fer et d'impuretés (Al, Si).

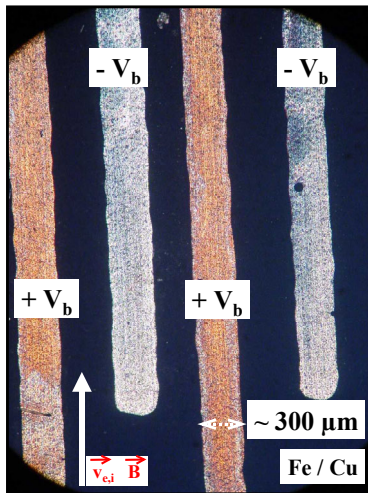


Fig. 19 : Microscopie optique d'un dépôt directement structuré de fer sur un motif de cuivre ($l = 300 \mu\text{m}$ et $d \approx 300 \mu\text{m}$). $V_b = -80 \text{ V} / + 20 \text{ V}$, $\alpha = 0^\circ$, $t_{dep} = 30 \text{ min}$. On remarque les lignes polarisées négativement couvertes de dépôt (en gris) et les lignes polarisées positivement exemptes de dépôt (couleur cuivrée).

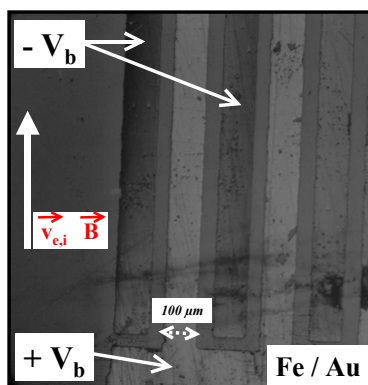


Fig. 20 : Microscopie optique d'un dépôt directement structuré de fer (foncé) sur un motif d'or (clair) ($l = 100 \mu\text{m}$ et $d = 50 \mu\text{m}$). $V_b = \pm 20 \text{ V}$, $\alpha = 5^\circ$, $t_{dep} = 60 \text{ min}$.

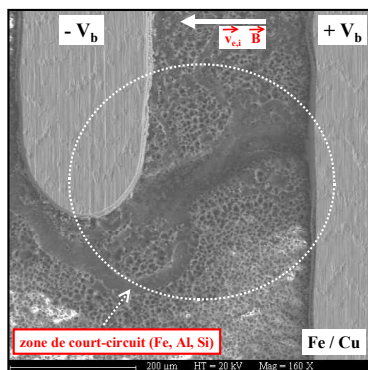


Fig. 21 : Microscopie électronique d'un dépôt directement structuré de fer sur un motif de cuivre ($l = 200 \mu\text{m}$ et $d \approx 200 \mu\text{m}$). $V_b = -80 \text{ V} / + 40 \text{ V}$, $\alpha = 0^\circ$, $t_{dep} = 15 \text{ min}$. La zone de court-circuit est entourée d'un cercle en pointillé. Les lignes des peignes sont \perp à la direction d'expansion et à B .

En vue de tester la sélectivité de la méthode, nous avons réalisé un dépôt en deux phases sur un substrat gravé de 2 peignes, constitués de lignes de $200 \mu\text{m}$, au pas de $800 \mu\text{m}$. Les lignes des peignes ont été orientées parallèlement à la direction d'expansion. Pour éviter le

risque de dépôt de neutres, le substrat était incliné d'un angle $\alpha = 5^\circ$. La durée de chaque phase était de 2 heures. Pendant la première phase, les tensions appliquées étaient respectivement de $+80\text{ V}$ et -80 V . Durant cette phase, du fer a été déposé. Pendant la seconde phase, les tensions ont été inversées et un dépôt de platine a été réalisé. Après dépôt, le substrat a été observé en

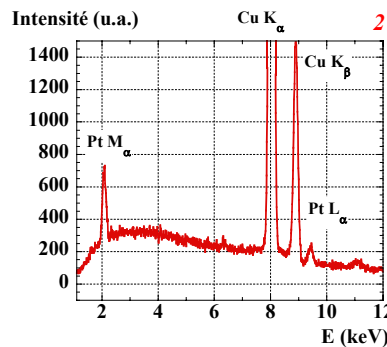
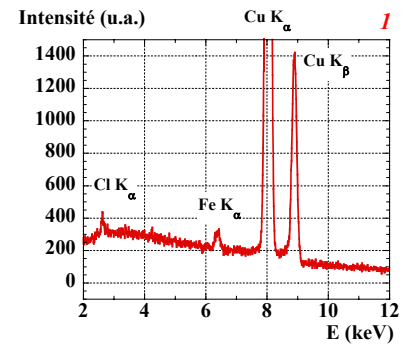
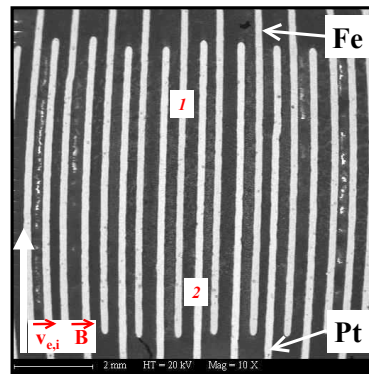


Fig. 22 : Analyse chimique (MEB) d'un dépôt alternatif de Fe et Pt sur Cu, $l = 200\ \mu\text{m}$ et $d \approx 200\ \mu\text{m}$. $V_b = \pm 80\text{ V}$, $\alpha = 5^\circ$, $t_{dep} = 2\text{ h}$ pour chacun des métaux.

microscopie électronique à balayage (mode composition, Fig. 22). L'analyse chimique a été réalisée en des points spécifiques des peignes (voir à titre d'exemple les spectres de microanalyse X de la Fig. 22). Les peignes soumis à une tension négative pendant le dépôt de fer sont strictement recouverts de fer, ceux soumis à une tension négative pendant le dépôt de platine sont strictement recouverts de platine. Ce résultat indique la grande sélectivité de la technique. Il confirme que la contribution des espèces neutres à ce type de dépôt est négligeable. Entre les lignes, un signal caractéristique de chaque espèce et environ 20 fois inférieur à celui mesuré sur les lignes, est détecté. Il illustre le fait que le potentiel répulsif n'est actif que sur l'épaisseur de gaine, de l'ordre de $50\ \mu\text{m}$ pour ces tensions.

En vue de tester l'homogénéité du dépôt, nous avons cartographié une partie d'une ligne de peigne (Cu) couverte de fer (MEB en mode électrons secondaires, Fig. 23). Pour cela, une série de 10 analyses ont été réalisées, pour lesquelles le faisceau d'électrons a été progressivement déplacé, par pas de $200\ \mu\text{m}$, sur une distance de 2 mm . La variation de signal observé, de l'ordre de 30 %, relève plutôt des incertitudes de ces caractérisations réalisées sur des substrats qui n'avaient pas été préparés pour ce type de caractérisation, que d'une véritable variation de l'épaisseur de dépôt. Notons également que la distance cartographiée est relativement courte.

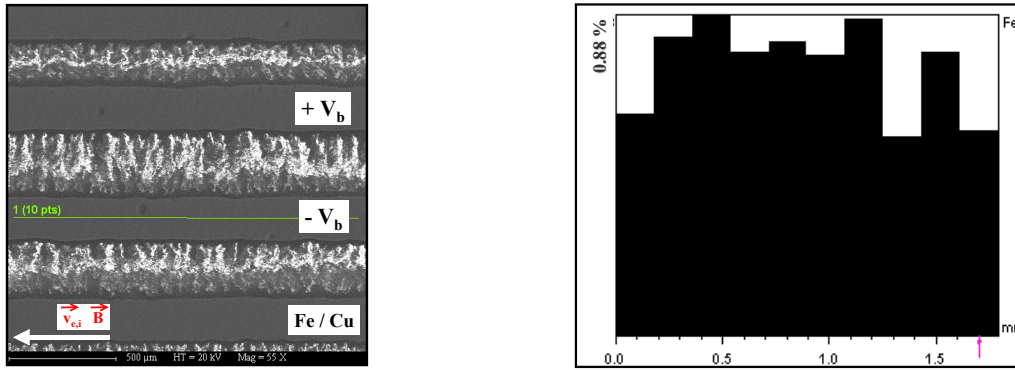


Fig. 23 : Cartographie d'une ligne d'un dépôt de Fe sur Cu, $l = 200 \mu\text{m}$ et $d \approx 200 \mu\text{m}$. $V_b = -80 \text{ V} / +40 \text{ V}$, $\alpha = 0^\circ$, $t_{\text{dep}} < 30 \text{ min}$.

IV.2 Taux d'ablation

À partir des courants ioniques mesurés avec les peignes, les taux de dépôt déduits (voir Chapitre 4 p. 124) sont de l'ordre de $8.8 \times 10^{13} \text{ ions s}^{-1}$ ($8 \times 10^{-9} \text{ g s}^{-1}$). Ces taux sont 5 fois inférieurs environ à ceux mesurés au Chapitre 4. Dans la configuration alors utilisée, la totalité des ions dirigés vers la sonde peuvent l'atteindre. Dans la configuration utilisée dans le présent chapitre, seuls les ions situés sur une épaisseur égale au rayon de Larmor sont finalement collectés. Ce rayon représente de l'ordre de 20 % de l'épaisseur totale du plasma, en très bon accord qualitatif avec notre résultat.

Des mesures magnétiques (VSM, voir Annexe B p. 188) ont aussi été effectuées sur des dépôts de fer réalisés sur des plaques carrées de cuivre de 4 mm de côté. Les temps de ces dépôts étaient de 30 min et 60 min, et les moments magnétiques correspondants sont de respectivement 10^{-6} A m^2 et $3.8 \times 10^{-6} \text{ A m}^2$. Considérant que l'aimantation du fer à 300 K est de $216.3 \text{ A m}^2 \text{ kg}^{-1}$, les masses de fer déposées sont de $4.6 \times 10^{-6} \text{ g}$ et $1.8 \times 10^{-5} \text{ g}$ et les épaisseurs de couches déduites sont de 50 nm et 125 nm. Les taux de dépôt sont alors de $2.6 \times 10^{-9} \text{ g s}^{-1}$ et $5 \times 10^{-9} \text{ g s}^{-1}$ respectivement. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles déduites ci-dessus. La variation significative du taux de dépôt d'une expérience à l'autre peut être reliée au fait qu'un faible changement de la position du substrat suffit à modifier significativement la façon dont le plasma intercepte le substrat, comme nous l'avons déjà signalé.

V CONCLUSION

La meilleure compréhension de l'action, sur le plasma PLD, du champ magnétique de la bobine supraconductrice et du champ électrique de la sonde de Langmuir, a été à l'origine de notre proposition d'associer un champ électrique au champ magnétique pour agir sur les mécanismes de dépôt. Notre idée est que le champ électrique agissant sur les ions doit permettre de les diriger à des emplacements prédéterminés et réaliser ainsi des dépôts directement structurés sur des substrats pré-gravés. Le rôle du champ magnétique, dans ce cadre, est de permettre d'atteindre un taux suffisant de dépôt. Des dépôts-tests ont été réalisés sur des substrats structurés de dimensions sub-millimétriques, orientés parallèlement à la direction d'expansion du plasma. À notre connaissance, il s'agit d'une approche originale et les résultats obtenus sont très encourageants. Cependant, de nombreuses expériences complémentaires restent à faire pour tester le véritable intérêt de cette approche. Ces expériences vont donc se prolonger dans d'autres conditions expérimentales, en particulier sur des substrats orientés perpendiculairement à la direction d'expansion, ainsi qu'avec l'objectif de réaliser des objets de taille de plus en plus réduite. Une demande de brevet est en cours de préparation.

VI RÉFÉRENCES

- 1 **C.D. Child**, *Discharge from hot CaO*. Phys. Rev. Series I, 32(5) (1911) p. 492-511.
- 2 **C.R. Phipps et R.W. Dreyfus**, *Laser ablation and plasma formation (Chap. 4 : The high laser irradiance regime)*, dans *Laser ionization mass analysis*, A. Vertes, R. Gijbels et F. Adams, Editors (1993) John Wiley and Sons New York, p. 369-431.
- 3 **N.W. Cheung, W. En, J. Gao, S.S. Iyer, B.P. Linder, J.B. Liu, X. Lu, J. Min et B. Shieh**, *Plasma immersion ion implantation for electronic materials applications*. International Conference on Solid State Devices and Materials (1995) Osaka.
- 4 **X.B. Tian, T. Zhang, R.K.Y. Fu et P.K. Chu**, *Influence of bias voltage on the tribological properties of titanium nitride films fabricated by dynamic plasma ion implantation / deposition*. Surface and Coatings Technology, 161 (2002) p. 232-236.
- 5 **M. Keidar, O.R. Monteiro, A. Anders et I.D. Boyd**, *Magnetic field effect on the sheath thickness in plasma immersion ion implantation*. Appl. Phys. Lett., 81(7) (2002) p. 1183-1185.
- 6 **H. Tong, R.K.Y. Fu, D. Tang, X. Zeng et P.K. Chu**, *Effects of magnetic field on pulse wave forms in plasma immersion ion implantation in a radio-frequency, inductively coupled plasma*. J. Appl. Phys., 92(5) (2002) p. 2284-2289.

Étude de plasmas générés par laser, soumis à des champs magnétique et électrique. Utilisation possible en techniques de dépôts.

Les propriétés de plasmas générés par laser ont été étudiées. Dans nos conditions expérimentales et quelques soient les éléments analysés (*Al, Cu, Fe, Mo, Pt*), la majorité des espèces évaporées sont des ions, d'énergies typiques de 60 eV à 100 eV . Du fait des mécanismes d'excitation et recombinaison, la constante adiabatique qui gouverne la détente du plasma (température, distribution angulaire) est de l'ordre de 1.2 , inférieure à la valeur $5/3$ caractéristique d'un gaz monoatomique.

Un fort confinement du plasma est obtenu sous un champ magnétique, B , jusqu'à 5 T . La température initiale du plasma alors déduite est de l'ordre de 10^5 K . Au premier ordre, la distribution énergétique n'est pas modifiée par le champ. Du fait de la forte densité du plasma résultant du confinement, les phénomènes de recombinaison ne sont pas négligeables.

Une méthode originale d'élaboration de dépôts directement structurés a été proposée, associant les effets combinés, sur un plasma, de champs magnétique et électrique.

Mots clefs : Dépôt laser pulsé, Élaboration de film, Plasma, Sonde de Langmuir, Mécanismes d'expansion, Champ magnétique, Confinement, Champ électrique, Gaine plasma, Température électronique, Énergie ionique, Distribution angulaire.

Study of laser generated plasmas, submitted to magnetic and electric fields. Possible use in deposition techniques.

The properties of laser generated plasmas have been studied. In the considered experimental conditions and for all studied elements (*Al, Cu, Fe, Mo, Pt*), the majority of the evaporated species are ions, with typical energies in the range $60\text{ eV} - 100\text{ eV}$. Due to excitation and recombination mechanisms, the adiabatic constant which governs expansion (temperature, angular distribution) is around 1.2 , less than the value $5/3$ expected for a monoatomic gas.

Strong plasma confinement is obtained under a magnetic field, B , of up to 5 T . The initial plasma temperature then deduced is of the order of 10^5 K . To first order, the ion energy distribution is not affected by the field. Due to the high plasma density resulting from confinement, recombination effects are significant.

An original approach for the preparation of directly structured materials has been proposed which associates the effects of magnetic and electric fields on plasmas.

Keywords : Pulsed laser deposition, Film preparation, Plasma, Langmuir probe, Expansion mechanisms, Magnetic field, Confinement, Electric field, Plasma sheath, Electronic temperature, Ionic energy, Angular distribution.