

Simulation Monte-Carlo du transport sous vide et sous gaz ambiant d'un panache plasma créé par ablation laser

Florence Garrelie*, Corinne Champeaux, Alain Catherinot

LMCTS, Esa 6015 CNRS, faculté des sciences, 123, av. Albert-Thomas, 87060 Limoges, France

(Reçu le 4 mai 1998, accepté le 22 décembre 1998)

Abridged English version at the end of the text

Abstract — Monte-Carlo simulation of the laser-ablated particle transport under vacuum and background gas. The expansion of the plasma plume created during the interaction between an excimer laser and a copper target is studied by a Monte-Carlo simulation. The global shape of the plume is followed in time using a three dimensional algorithm, allowing the simulation of the expansion both under vacuum and background gas. The laser energy absorption by the plume of evaporated particles is found to have dominant effects on the plume shape. An approximation of these effects is made by taking into account a kinetic energy transfer in the plume through the recombination of ionized and excited particles by collisional recombinative processes. Results of the simulation of the expansion under vacuum are compared with experimental results obtained by fast photography of the plume and time of flight measurements. First results of the simulation by a Monte-Carlo method of the plasma plume expansion under residual pressure show clearly the snowplow of the leading edge of the plume and the background particles deficiency in the dense region of the plume. © Elsevier, Paris.

ablation / simulation / Monte-Carlo / laser / plasma / expansion / copper

Résumé — L'expansion du panache plasma créé lors de l'interaction entre un laser à excimères et une cible de cuivre est étudiée par une simulation de type Monte-Carlo. L'évolution temporelle des dimensions du panache est suivie grâce à un algorithme tridimensionnel permettant de simuler l'expansion, à la fois sous vide et sous atmosphère résiduelle. L'absorption de l'énergie du faisceau laser incident par le panache de particules évaporées exerce des effets dominants sur l'aspect du panache. Une approximation de ces effets est effectuée en considérant la recombinaison des espèces ionisées et excitées par des processus collisionnels, conduisant à un gain en énergie cinétique dans le processus d'expansion. Les résultats de la simulation de l'expansion sous vide sont comparés avec des résultats expérimentaux obtenus par imagerie résolue en temps du plasma et par mesure du temps de vol des espèces excitées. Les premiers résultats de la simulation par une méthode Monte-Carlo de l'expansion du panache plasma sous atmosphère résiduelle mettent clairement en évidence la compression du gaz ambiant au-dessus du panache, ainsi que le déficit en particules ambiantes dans la zone la plus dense du panache. © Elsevier, Paris.

ablation / simulation / Monte-Carlo / laser / plasma / expansion / cuivre

Nomenclature

d	hauteur dans le panache par rapport à la surface de la cible.....	m	T_s	température de la surface.....	K
f_s	fonction de distribution des vitesses des particules évaporées		v_t	vitesse thermique des particules évaporées	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
k	constante de Boltzmann	$\text{J}\cdot\text{K}^{-1}$	v_x	vitesse de la particule dans la direction x	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
m	masse d'une particule de cuivre	kg	v_y	vitesse de la particule dans la direction y	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
n_s	densité de particules au dessus de la surface de la cible.....	m^{-3}	v_z	vitesse de la particule dans la direction z	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
r	coordonnée dans la direction parallèle à la surface.....	m	z	coordonnée dans la direction normale à la surface	
r_0	rayon de l'impact laser sur la surface	m	Δt	intervalle de temps utilisé dans la simulation.....	s
			τ	durée de l'impulsion laser.....	s

* Correspondance et tirés à part.
garrelie@unilim.fr

1. INTRODUCTION

Les techniques de dépôt de couches minces sont très nombreuses et suscitent actuellement un grand intérêt dans de nombreux domaines. Parmi elles, la photoablation d'une cible massive par un laser à excimères [1] a déjà permis d'obtenir des dépôts possédant de très bonnes propriétés [2, 3].

Cependant, tous les phénomènes mis en jeu lors du processus d'ablation laser ne sont pas encore parfaitement maîtrisés. Afin de mieux comprendre les phénomènes de croissance de la couche mince, il apparaît nécessaire de contrôler le transport des espèces de la cible jusqu'au substrat. En raison du fort taux d'évaporation, les particules subissent suffisamment de collisions pour que les distributions finales des particules (près du substrat) soient très différentes des distributions initiales.

Des modèles ont été développés pour décrire l'expansion de la bulle de matière éjectée [4–6] à partir des équations de la dynamique des fluides. Cependant, ces approches ne sont valables que lorsque la densité de particules est suffisamment élevée pour que le gaz puisse être considéré comme un fluide continu. Près du substrat, où s'effectue la croissance de la couche mince, la densité de matière éjectée est relativement faible, ce qui ne permet pas de valider cette hypothèse.

Dans cet article, nous présentons une simulation Monte-Carlo 3-D du transport des espèces au-dessus de la cible lorsque ce transport s'effectue sous vide ou sous atmosphère résiduelle.

Jusqu'à maintenant, les simulations Monte-Carlo ont été utilisées pour étudier l'effet des collisions entre les particules évaporées sous vide [7–10] à un taux d'évaporation relativement faible par rapport à celui obtenu par ablation laser.

Une simulation de l'expansion du panache dans des conditions similaires à celles rencontrées lors de la réalisation de couches minces par ablation par laser UV d'une cible massive a été développée. Les résultats obtenus lorsque l'expansion s'effectue sous vide sont comparés avec les résultats expérimentaux.

Cette méthode est ensuite étendue au cas où l'expansion s'effectue sous une atmosphère résiduelle d'argon. Le transport de particules évaporées en présence d'une atmosphère résiduelle lors de l'interaction entre un faisceau laser impulsif et une cible solide a déjà été étudié par une méthode Monte-Carlo du type trajectoires aléatoires [11, 12], ne permettant pas une description du mouvement collectif des particules évaporées dans le gaz ambiant, ni du mouvement éventuel des particules du gaz ambiant. Les résultats mettent clairement en évidence le transfert d'énergie entre les particules évaporées de la cible et les particules du gaz ambiant. Le mouvement des particules du gaz ambiant, négligé lors de la description par une approche du type trajectoires aléatoires [11, 12], est également clairement

observé. L'approche proposée semble donc également adaptée à la simulation de l'expansion sous atmosphère résiduelle des particules évaporées lors de l'interaction entre un faisceau laser impulsif et une cible.

2. MODÈLE

L'expansion du panache de matière éjectée est simulée par une procédure de type Monte-Carlo basée sur la résolution de l'équation de Boltzmann [13].

Compte tenu du nombre élevé de particules évaporées pendant l'impulsion laser ($\approx 10^{15}$), le panache est simulé en dimensions réduites [14], le nombre de particules simulées étant alors considérablement diminué. Cette réduction d'échelle passe par un adimensionnement de tous les paramètres utilisés dans le calcul. Les vitesses sont adimensionnées par rapport à v_t , v_t étant la vitesse thermique des particules issues de la surface, définie par :

$$v_t = \sqrt{\frac{8 k T_s}{\pi m}}$$

où k est la constante de Boltzmann, T_s est la température de la surface de la cible et m est la masse des particules de cuivre.

Le temps est divisé par la durée de l'impulsion laser τ ; les distances sont adimensionnées par rapport au produit ($v_t \tau$).

2.1. Expansion sous vide

La méthode développée pour simuler l'expansion sous vide a été présentée en détail dans la référence [14]. Nous en rappellerons uniquement les principales caractéristiques. L'idée principale est la dissociation du mouvement des particules et des collisions pendant un intervalle de temps Δt [13]. L'écoulement étant supposé axi-cylindrique, le volume de simulation au-dessus de la cible est divisé en cellules repérées par deux coordonnées z , orthogonale au plan de la surface, et r , parallèle à ce même plan.

La simulation commence quand toutes les cellules sont vides. Pendant la durée de l'impulsion laser, les particules sont évaporées à partir d'une surface se présentant sous la forme d'un disque de rayon r_0 . Le flux de particules issues de cette surface prend en compte une distribution radiale d'énergie du faisceau laser. La profondeur de matière évaporée a été déterminée à partir de mesures réalisées lors de l'interaction entre un laser à excimères KrF et une cible massive de cuivre. L'évolution temporelle de la profondeur évaporée pendant l'impulsion laser a été estimée par un calcul numérique d'interaction thermique laser impulsif – cible de cuivre [15].

Le processus d'interaction est supposé purement thermique. Ainsi, les vitesses des particules évaporées

sont choisies de façon aléatoire parmi une distribution semi-maxwellienne des vitesses [16] :

$$f_s = \frac{n_s}{(2\pi k T_s/m)^{3/2}} \exp\left(\frac{m(v_x^2 + v_y^2 + v_z^2)}{2kT_s}\right)$$

où $v_z > 0$, $-\infty < v_x$, $v_y < +\infty$, n_s est la densité de particules près de la surface et T_s est la température de surface.

Compte tenu du flux élevé de particules évaporées, la température de la surface de la cible est estimée en considérant la pression exercée par les particules évaporées à partir de la loi de Clausius-Clapeyron [17]. La valeur obtenue est voisine de la température critique du cuivre (8 000 K), très supérieure à la température de vaporisation dans les conditions normales de température et de pression. Les simulations ont donc été effectuées en considérant une distribution semi-maxwellienne des vitesses initiales des particules à une température de surface égale à la température critique du cuivre.

Le déplacement et les interactions des particules ainsi évaporées sous vide sont ensuite calculés par intervalles de temps successifs Δt . Les collisions entre particules éjectées sont calculées à l'intérieur d'une même cellule par la méthode du compteur de temps [18], les deux particules pouvant effectuer une collision dans la cellule étant choisies de façon pseudo-aléatoire à l'aide d'un test, dit test «d'acceptance-réjection», sur le produit de la vitesse relative des deux particules par la section efficace de collision. La section efficace de collision dépend de l'énergie mise en jeu lors de la collision, ε , à travers une loi en $\varepsilon^{-1/2}$, conforme à l'évolution de cette section efficace avec ε . L'angle de déviation des trajectoires après la collision est choisi de façon aléatoire parmi une distribution uniforme dans tout l'espace de simulation.

2.2. Expansion sous atmosphère résiduelle

Lors de l'expansion sous une atmosphère résiduelle d'argon, la méthode de simulation est similaire à celle présentée précédemment, les trajectoires des particules de cuivre (évaporées) et des particules d'argon (gaz ambiant) étant calculées parallèlement. L'approche proposée ne distingue pas de phases temporelles pendant lesquelles seules les interactions entre particules évaporées ou entre particule évaporée et particule du gaz ambiant sont calculées. Les différentes interactions peuvent intervenir simultanément, quel que soit le délai auxquelles elles sont calculées. La phase d'évaporation des particules de cuivre est simulée de la même façon que précédemment. Les positions initiales des particules du gaz ambiant dans le volume simulé sont déterminées de façon aléatoire, à partir de la pression résiduelle de gaz ambiant. Dès que la phase d'évaporation des particules de cuivre commence, les particules d'argon

sont simulées de la même façon que les particules de cuivre, en dissociant le mouvement et les collisions sur un intervalle de temps Δt . Les collisions entre les différentes particules sont calculées par la méthode du compteur de temps [18], la probabilité respective de chaque type de collision (cuivre-cuivre, cuivre-argon ou argon-argon) étant déterminée à partir de la section efficace de collision et de la densité de particules de l'espèce considérée. Un test aléatoire basé sur le rapport de ces probabilités est utilisé pour déterminer le type de collision à calculer. Cette approche, plus coûteuse en terme de temps de calcul, permet de simuler simultanément les trajectoires des particules évaporées et des particules du gaz ambiant. Elle ne nécessite donc aucune approximation sur, par exemple, le déplacement des particules du gaz ambiant après une collision, comme il est nécessaire d'en effectuer pour une méthode Monte-Carlo de trajectoires aléatoires [16, 17]. Cette condition est nécessaire, compte tenu du fort taux d'évaporation considéré, et donc de la forte densité de particules dans le panache de matière évaporée.

Le volume de simulation est divisé en 60 000 cellules de dimensions variables. À des délais élevés par rapport au début de l'impulsion laser, la densité dans la bulle de matière éjectée a très fortement diminué. Afin de limiter les erreurs statistiques, le nombre de particules de cuivre utilisé dans la simulation est augmenté progressivement jusqu'à une valeur de 960 000. De la même façon, lors de l'étude sous atmosphère résiduelle, le nombre de particules du gaz ambiant simulées est augmenté dans le même rapport.

Notre programme d'expansion sous vide a été testé en comparant les résultats d'une version modifiée pour la description d'écoulement à faible taux de désorption avec les résultats fournis par un modèle Monte-Carlo 1-D [9] et une approche analytique [19]. La vitesse d'écoulement est reproduite avec un excellent accord.

3. RESULTATS

L'expansion du panache plasma créé lors de l'interaction entre un laser à excimères et une cible de cuivre a été étudiée par la simulation Monte-Carlo présentée précédemment. Dans un premier temps, les résultats concernant l'expansion sous vide sont présentés et comparés avec des résultats expérimentaux. Ensuite, les premiers résultats concernant l'expansion sous une atmosphère résiduelle d'argon sont exposés et discutés.

3.1. Expansion sous vide

Afin d'effectuer une comparaison quantitative avec les observations expérimentales, nous avons réalisé un diagnostic du panache plasma créé lors de l'interaction entre un laser à excimères KrF et une cible de cuivre. Avant de présenter les résultats obtenus par

la simulation, nous présenterons les principaux résultats expérimentaux obtenus par imagerie résolue en temps du panache et par spectroscopie optique d'émission.

3.1.2. Résultats expérimentaux

Un laser à excimères KrF (Lambda Physik EMG 150), dont les principales caractéristiques sont une longueur d'onde de 248 nm et une durée d'impulsion de 20 ns, est focalisé sur une cible de cuivre placée dans une enceinte à ultravide. L'angle d'incidence du faisceau laser sur la cible est voisin de 45° , la surface d'impact étant renouvelée entre chaque tir laser. En raison des contraintes de notre algorithme, un diaphragme circulaire est placé au centre du faisceau laser, de façon à sélectionner uniquement la partie centrale du faisceau. La fluence laser utilisée est de $17 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, le diamètre de l'impact laser sur la cible est de $464 \mu\text{m}$ et la profondeur moyenne de matière évaporée est de l'ordre de $0,1 \mu\text{m}$. Les mesures ont été réalisées sous une pression résiduelle de 5 Pa d'air.

Le dispositif d'imagerie résolue en temps du panache se compose d'une caméra ICCD (Princeton Instruments) et d'un objectif Nikkor (domaine spectral : 350–800 nm). Les mesures par spectroscopie optique d'émission résolue en temps et spatialement ont été réalisées en formant l'image du plasma sur les fentes d'entrée d'un monochromateur à haute résolution (THR 1000 Jobin-Yvon), équipé d'un photomultiplicateur à temps de montée très rapide (RCA 7265). Le signal est ensuite dirigé vers un digitaliseur (2440 Tektronix). La synchronisation entre l'impulsion laser et les acquisitions est assurée par un générateur de délai (DG 535 Stanford Research Systems).

L'imagerie du panache permet de suivre l'évolution temporelle des dimensions du plasma de matière éjectée à travers la désexcitation radiative des différentes espèces dans le domaine spectral 350–800 nm.

Des photographies du panache ont été réalisées à différents délais après le début de l'impulsion laser. Le temps d'intégration du signal a été fixé à 5 ns, et chaque photographie correspond à un tir laser. Elles sont présentées sur la figure 1.

Dans les premiers instants de l'expansion, le plasma se compose d'une zone très lumineuse à la surface de la cible, puis il croît dans les trois directions de l'espace, la zone la plus lumineuse s'éloignant progressivement de la surface. Au-delà d'un délai supérieur à 800 ns, les dimensions de la bulle lumineuse diminuent fortement, du fait de la diminution de l'excitation des particules par collisions électroniques [20]. Le panache s'étend librement au-dessus de la cible [21]. La hauteur du front de la bulle plasma évolue linéairement avec le temps, ce qui conduit à une vitesse moyenne d'expansion voisine de $2 \cdot 10^4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. L'évolution temporelle de la hauteur atteinte par le centre de masse du panache lumineux est linéaire, de la même façon que l'évolution temporelle de la hauteur atteinte par le front du panache. La

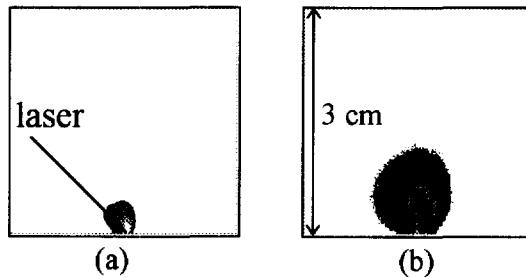


Figure 1. Images du panache plasma formé lors de l'interaction entre un laser à excimères ($\lambda_{\text{KrF}} = 248 \text{ nm}$, fluence laser = $17 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$) et une cible de cuivre à différents intervalles de temps après le début de l'impulsion laser : a) 200 ns, b) 500 ns. Taille de l'image = $3 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$.

Figure 1. Temporally resolved images of the plasma plume created above a copper target by an excimer laser ($\lambda_{\text{KrF}} = 248 \text{ nm}$, laser fluence = $17 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$) at different delays after the beginning of the laser pulse: a) 200 ns, b) 500 ns. Size = $3 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$.

vitesse moyenne d'expansion du panache déduite de cette évolution est de $8,6 \cdot 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$.

Afin d'obtenir une comparaison plus détaillée avec la simulation, nous avons étudié, par spectroscopie optique d'émission, l'évolution temporelle de l'intensité émise à une longueur d'onde donnée par une fine tranche de plasma, située à une distance d de la surface de la cible. Les mesures de temps de vol spectroscopique des particules permettent d'accéder à la fonction de distribution des vitesses (dans la direction orthogonale à la surface de la cible) des particules. Ces résultats seront présentés et comparés directement avec ceux issus de la simulation dans le paragraphe suivant.

Il faut cependant noter que cette étude expérimentale concerne uniquement la composante lumineuse du plasma (espèces émettrices), tandis que les résultats de la simulation correspondent à l'ensemble des particules simulées. Cependant, il a été montré récemment [20] qu'à des délais supérieurs à 400 ns et pour des distances supérieures à 4 mm de la cible, le plasma est composé principalement de particules neutres excitées à des niveaux d'énergie relativement faible. Nous présentons ci-dessous les résultats obtenus par la simulation Monte-Carlo 3-D, ainsi que les modifications apportées à notre modèle pour obtenir une comparaison satisfaisante.

3.1.3. Résultats de la simulation

La simulation a été effectuée dans des conditions identiques à celles utilisées pour l'étude expérimentale, à savoir une fluence laser de $17 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, un impact laser sur la cible de $464 \mu\text{m}$ de diamètre et une profondeur moyenne de matière évaporée évoluant avec le temps et la position radiale sur le spot, dont la valeur moyenne est $0,1 \mu\text{m}$. La durée de l'impulsion laser est de 20 ns. Le mouvement de ces particules a été suivi pendant 1 μs , la taille des cellules et le pas de temps ayant été

modifiés plusieurs fois pendant la simulation. La *figure 2* présente la distribution de densité dans le panache à un délai de 500 ns après le début de l'impulsion laser. Le panache est constitué d'une partie dense, qui se détache progressivement de la surface, mais la bulle reste cependant toujours en contact avec la surface. Une étude quantitative montre que les vitesses des particules, donc les dimensions du panache, sont très inférieures à celles obtenues expérimentalement (la simulation conduit à une hauteur du front du panache de 2,4 mm pour un délai de 500 ns après le début de l'impulsion laser ; celle déduite de l'étude expérimentale est de 9,8 mm). Nous avons attribué ce désaccord à la présence de particules chargées dans le panache. L'énergie incidente du faisceau laser peut être en partie absorbée par la bulle, de densité de particules élevée, par différents processus [22, 23]. Le taux d'ionisation dans le plasma à la fin de l'impulsion laser peut atteindre 100 %. De nombreux processus élastiques et inélastiques doivent alors, en principe, être pris en considération. En raison de la complexité des processus mis en jeu, il est difficile de simuler le plasma dans son intégralité. Nous avons introduit dans notre modèle une source d'énergie permettant une approximation du gain en énergie dans le processus d'expansion [14]. Afin de prendre en compte l'absorption du laser par le plasma, nous avons supposé qu'une quantité d'énergie était transportée par les particules lourdes.

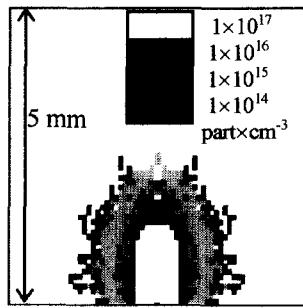


Figure 2. Simulation de la distribution de densité de particules dans le panache 500 ns après le début de l'impulsion laser (expansion sous vide), lorsque le panache est transparent au rayonnement laser. Taille de l'image = 5 mm × 5 mm.

Figure 2. Simulation of the particles density distribution in the copper plume at a delay of 500 ns after the beginning of the laser pulse (expansion under vacuum) when the plume is transparent to the laser beam. Size = 5 mm × 5 mm.

Ainsi, certaines particules, correspondant aux ions qui se recombinent par des processus collisionnels, fournissent de l'énergie cinétique aux particules du panache. L'énergie interne qu'elles transportent est convertie en énergie cinétique, après un nombre arbitraire de collisions supposé compris entre 1 et 3. L'instant où va s'effectuer ce transfert d'énergie est choisi parmi une distribution pseudo-aléatoire, qui tient compte de la diminution de la densité dans le panache avec le temps. La comparaison simulation-expérience [14] indique que

35 % des particules transportent une quantité d'énergie égale à l'énergie d'ionisation du cuivre, ce qui revient à dire que cette proportion d'ions initiaux redistribuera son énergie aux autres particules pendant leur recombinaison par des processus collisionnels. Cela correspond à une fraction de 6 % de l'énergie incidente du faisceau laser, qui est absorbée par le panache de matière éjectée et redistribuée sous forme d'énergie cinétique dans le panache pendant la recombinaison retardée dans le temps des ions et particules excitées. Ce résultat est en bon accord avec des calculs numériques [24] sur l'expansion du panache créé lors de l'irradiation à une fluence de $25 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$ d'une cible d'aluminium par un laser à excimères.

L'énergie interne des autres ions est supposée perdue par émission de rayonnement. Il est donc clair que ces approximations ne permettent pas de considérer les pertes radiatives dans le panache. Ces collisions, au cours desquelles se recombinent les ions, sont calculées comme des collisions inélastiques, les interactions à grandes distances, dues à la présence de particules chargées, étant toujours ignorées.

La simulation est effectuée dans les mêmes conditions que précédemment, excepté la présence de ces particules ionisées. La *figure 3* représente la distribution de la densité de particules dans la bulle de matière éjectée à différents délais (200, 500 ns). Les dimensions de chaque image ($3 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$) sont les mêmes que sur la *figure 1*. A la fin de l'impulsion laser, la densité suit une décroissance exponentielle avec la distance par rapport à la surface.

L'aspect du panache est similaire à celui observé expérimentalement. Toutefois, les dimensions transverses de la bulle sont inférieures dans le cas de la simulation : le plasma semble s'étendre préférentiellement dans la direction orthogonale à la cible. De la même façon que pour l'étude expérimentale, nous avons suivi l'évolution temporelle de la hauteur du front du panache et de la position du centre de masse de la bulle de matière éjectée. Les vitesses d'expansion déduites de ces observations sont, respectivement, $1,6 \cdot 10^4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et $7,8 \cdot 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Compte tenu des approximations effectuées, les valeurs obtenues sont en assez bon accord avec celles déduites de l'étude expérimentale (valeurs respectives de $2 \cdot 10^4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et $8,6 \cdot 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$).

La distribution de vitesse des particules dans la direction normale à la cible a été déterminée en simulant des courbes de temps de vol à différentes hauteurs dans le panache. La comparaison de ces résultats permet de vérifier nos hypothèses quant à la redistribution de l'énergie cinétique entre les particules contenues dans la bulle de matière éjectée.

La *figure 4* représente l'évolution temporelle du nombre de particules passant à une hauteur de 5 mm dans le panache, ainsi que l'évolution expérimentale. L'accord entre ces évolutions est satisfaisant. La même comparaison a été effectuée à différentes hauteurs d dans le panache. Près de la surface de la cible ($d < 4 \text{ mm}$), les résultats ne sont pas en aussi bon accord, notamment

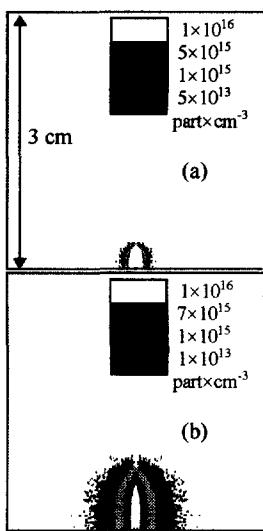


Figure 3. Simulation de la distribution de densité de particules dans le panache pour différents intervalles de temps après le début de l'impulsion laser (expansion sous vide), lorsque environ 6 % de l'énergie incidente du faisceau laser est absorbée dans le panache et redistribuée dans l'expansion au cours de la recombinaison des ions. a) 200 ns, b) 500 ns. Taille de l'image = 3 cm × 3 cm.

Figure 3. Simulation of the density distribution in the copper plume at different delays after the beginning of the laser pulse (expansion under vacuum), with about 6 % of the incoming laser energy absorbed in the plume and redistributed into the expansion through the recombination of ionic species. a) 200 ns, b) 500 ns. Size = 3 cm × 3 cm.

en ce qui concerne les particules les moins énergétiques. Seule la position temporelle du maximum de la courbe est correctement reproduite par la simulation. Les approximations effectuées ne semblent pas suffisantes pour décrire complètement le gain en énergie cinétique, de nombreux processus susceptibles d'induire des transferts d'énergie n'ayant pas été considérés. À des distances supérieures à 4 mm de la cible, la simulation reproduit correctement les distributions de vitesse des particules, à la fois sur la position temporelle du maximum de la courbe et sur l'allure de l'évolution, ce qui tend à confirmer la validité de nos hypothèses.

3.2. Expansion sous atmosphère résiduelle

La méthode de simulation sous vide a été étendue au cas où l'expansion du panache se fait sous une pression résiduelle d'argon de 100 Pa. La simulation est effectuée dans les mêmes conditions que précédemment (fluence laser de $17 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, 6 % de l'énergie incidente du faisceau laser étant convertie en énergie cinétique dans le panache au cours de la recombinaison retardée dans le temps des ions et des particules excitées), excepté la présence de particules d'argon dans l'espace au-dessus de la cible.

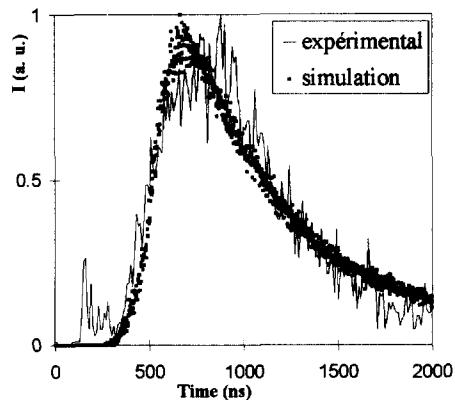


Figure 4. Simulation (symbole) et évolution expérimentale des courbes de temps de vol des particules de cuivre à une hauteur de 5 mm dans le panache obtenu par l'irradiation par un laser KrF, à une fluence de $17 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$ (expansion sous vide).

Figure 4. Simulated (symbol) and experimental (full line) time of flight curves of copper particles at a distance of 5 mm above the target obtained after a KrF laser irradiation at a fluence of $17 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$ (expansion under vacuum).

Les collisions entre ces différents types de particules sont calculées par la méthode présentée au § 2.

La figure 5 présente la distribution de la densité de particules dans le panache de matière éjectée, qui correspond à la distribution de densité des particules de cuivre, ainsi que la distribution de densité de particules du gaz ambiant (argon), à différents délais après le début de l'impulsion laser. Ces résultats mettent clairement en évidence les effets des collisions entre les particules évaporées et les particules du gaz ambiant. Les trajectoires des particules de cuivre sont très sensibles à l'introduction d'un gaz environnant [16, 17].

Plus précisément, au début de l'expansion, en raison de la densité élevée de particules dans le panache de matière éjectée et de la différence d'énergie cinétique entre les particules évaporées et les particules du gaz ambiant, les particules d'argon sont « poussées » en dehors du volume occupé par les particules de cuivre, la zone centrale du panache étant déficiente en particules du gaz ambiant.

À des délais plus élevés, les particules d'argon, ainsi déplacées, sont comprimées dans une zone de densité plus importante, ce qui a pour effet immédiat de freiner le panache de matière évaporée lors de l'interaction.

La vitesse de propagation du front du panache est donc considérablement diminuée par rapport au cas où l'expansion s'effectue sous vide, cette diminution résultant directement de l'effet de « chasse-neige » du front du panache. La vitesse instantanée de propagation du front du panache déduite de la hauteur atteinte à un délai de 1 μs est voisine de $1 \cdot 10^4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ (à comparer avec la valeur de $1.6 \cdot 10^4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ obtenue lors de l'expansion sous vide). Ces observations qualitatives sont en bon accord avec les observations expérimentales de

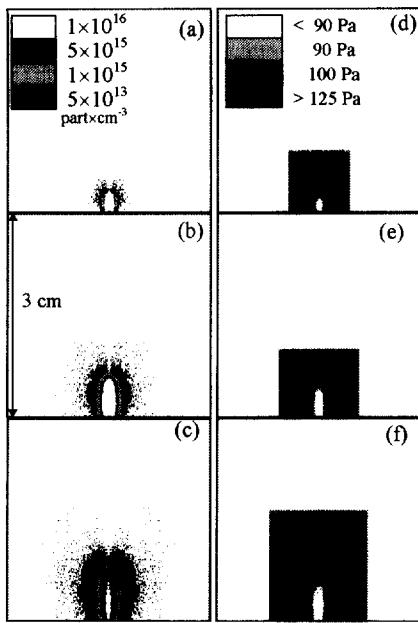


Figure 5. Simulation de la distribution de densité de particules lorsque l'expansion s'effectue sous une pression résiduelle de 100 Pa d'argon ; distribution de densité des particules de cuivre (a) (b) (c) et distribution de densité d'argon (d) (e) (f), à différents délais : (a) (d) 200 ns, (b) (e) 500 ns, (c) (f) 800 ns. Taille de l'image = 3 cm × 3 cm. Les dimensions du volume simulé (rectangle sombre) sont inférieures aux dimensions de l'image.

Figure 5. Simulation of the density distribution for the expansion under a residual argon pressure of 100 Pa; density distribution of copper particles (a) (b) (c) and density distribution of ambient gas particles (d) (e) (f), at different delays after the beginning of the laser pulse: (a) (d) 200 ns, (b) (e) 500 ns, (c) (f) 800 ns. Size = 3 cm × 3 cm. The simulated volume size (dark rectangle) is lower than the image size.

l'expansion du panache sous atmosphère résiduelle, qui mettent en évidence une perte d'énergie des particules évaporées due aux collisions avec les particules du gaz ambiant et ce fameux effet de «chasse-neige» [25-27].

Cette méthode de simulation de l'expansion d'un panache plasma créé par ablation laser semble donc bien appropriée à la description de l'expansion sous atmosphère résiduelle. En effet, le fait de ne pas négliger le mouvement des particules du gaz ambiant après les collisions avec les particules évaporées par ablation laser a permis l'observation, à notre connaissance pour la première fois par une méthode Monte-Carlo, de la zone de compression située au-dessus du panache.

4. CONCLUSION

Nous avons présenté une simulation par une approche Monte-Carlo de l'expansion sous vide et sous

atmosphère résiduelle du panache créé lors de l'interaction entre un laser impulsionnel et une cible de cuivre.

Dans un premier temps, une étude de l'expansion sous vide a mis en évidence l'influence de l'absorption d'une partie de l'énergie incidente du faisceau laser dans le panache et la redistribution retardée dans le temps de cette énergie sous forme d'énergie cinétique. Une comparaison satisfaisante avec les résultats issus de l'étude expérimentale a été effectuée, notamment en ce qui concerne les distributions en énergie cinétique des particules dans la direction normale à la surface.

Dans un second temps, nous avons présenté une extension de la méthode de simulation, afin de l'appliquer à l'expansion d'un panache d'ablation laser sous atmosphère résiduelle. Une nouvelle approche permettant de calculer les interactions entre les différents types de particules est proposée. Elle autorise l'étude simultanée du mouvement collectif des particules évaporées de la cible et du mouvement collectif éventuel des particules du gaz ambiant, ce qui ne peut être effectué par une simulation Monte-Carlo du type trajectoires aléatoires. Les résultats issus de la simulation mettent clairement en évidence les effets des collisions entre les particules évaporées et les particules du gaz ambiant. La vitesse de propagation du front du panache est considérablement diminuée par rapport au cas où l'expansion s'effectue sous vide, ce qui résulte directement de l'effet de «chasse-neige» du front du panache. En outre, en raison de la densité de particules élevée dans le panache de matière éjectée au début de l'expansion, la zone centrale du panache apparaît être déficitaire en particules du gaz ambiant. Cette méthode de simulation apparaît donc appropriée et nous a permis, à notre connaissance pour la première fois, de réaliser la simulation de l'expansion sous atmosphère résiduelle d'un panache créé par ablation laser. Une étude plus approfondie de l'influence, par exemple, de la pression ou de la nature du gaz ambiant peut donc maintenant être envisagée, avec d'évidentes applications dans le domaine de l'élaboration de couches minces par ablation par laser.

RÉFÉRENCES

- [1] Chrisey D.B., Hubler C.K., Pulsed laser deposition of thin films, Naval Research Laboratory, Washington DC, 1994.
- [2] Champeaux C., Marchet P., Aubreton J., Mercurio J.-P., Catherinot A., In situ growth of YBaCuO superconducting thin films by excimer laser ablation, Appl. Surf. Sci. 69 (1993) 335-339.
- [3] Germain C., Girault C., Aubreton J., Catherinot A., Bec S., Tonck A., Photoablation of a graphite target by a KrF laser beam. Realization of hard carbon thin films, Diam. Relat. Mater. 4 (1995) 309-313.
- [4] Singh R.K., Holland O.W., Narayan J., Theoretical model for deposition of superconducting thin films using pulsed laser evaporation technique, J. Appl. Phys. 68 (1) (1990) 233-247.



- [5] Kools J.C.S., Baller T.S., de Zwart S.T., Dieleman J., Gas flow dynamics in laser ablation deposition, *J. Appl. Phys.* 71(9) (1992) 4547-4556.
- [6] Sibold D., Urbassek H.M., Gas-dynamic study of pulsed desorption flows into a vacuum, *Phys. Fluids A* 4 (1) (1992) 165-177.
- [7] Noorbatcha I., Lucchese R.R., Zeiri Y., Monte-Carlo simulations of gas-phase collisions in rapid desorption of molecules from surfaces, *J. Chem. Phys.* 86(10) (1987) 5816- 5824.
- [8] Noorbatcha I., Lucchese R.R., Zeiri Y., Effects of gas-phase collisions in rapid desorption of molecules from surfaces in the presence of coadsorbates, *J. Chem. Phys.* 89(8) (1988) 5251-5263.
- [9] Sibold D., Urbassek H.M., Kinetic study of pulsed desorption flows into vacuum, *Phys. Rev. A* 43 (12) (1991) 6722-6734.
- [10] Itina T.E., Tokarev V.N., Marine W., Autric M., Monte-Carlo simulation study of the effects of nonequilibrium chemical reactions during pulsed laser desorption, *J. Chem. Phys.* 106 (21) (1997) 8905-8912.
- [11] Kools J.C.S., Monte Carlo simulations of the transport of laser-ablated atoms in a diluted gas, *J. Appl. Phys.* 74 (10) (1993) 6401-6406.
- [12] Itina T.E., Marine W., Autric M., Monte-Carlo simulation of pulsed laser ablation from two-component target into diluted ambient gas, *J. Appl. Phys.* 82 (7) (1997) 3536-3542.
- [13] Bird G.A., Molecular Gas Dynamics, Clarendon, Oxford, 1976.
- [14] Garrelie F., Aubreton J., Catherinot A., Monte-Carlo simulation of the laser-induced plasma plume expansion under vacuum: comparison with experiments, *J. Appl. Phys.* 83 (10) (1998) 5075-5082.
- [15] Singh R.K., Viatella J., Personal computer-based simulation of laser interactions with materials, *J.O.M.* (1992) 20-23.
- [16] Kelly R., Dreyfus R.W., Reconsidering the mechanisms of laser-sputtering with Knudsen-layer formation taken into account, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* 32 (1988) 341-348.
- [17] Aden M., Beyer E., Herziger G., Kunze H., Laser-induced vaporization of a metal surface, *J. Phys. D Appl. Phys.* 25 (1992) 57-65.
- [18] Bird G.A., Molecular gas dynamics and the direct simulation of gas flows, Oxford Science Publications, 1994.
- [19] Kelly R., Gas dynamics of the pulsed emission of a perfect gas with applications to laser sputtering and to nozzle expansion, *Phys. Rev. A* 46 (2) (1992) 860-874.
- [20] Wu J.D., Pan Q., Chen S.C., Investigation of the dynamics of copper plasma generated from a laser-ablated target using optical emission analysis, *Appl. Spectrosc.* 51(6) (1997) 883-888.
- [21] Angleraud B., Étude de l'ablation par laser UV de cibles de nitride de bore ; application à la réalisation de couches minces, thèse, université de Limoges, 1995.
- [22] Rosen D.I., Mitteldorf J., Kothandaraman G., Pirri A.N., Puch E.R., Coupling of pulsed 0.35-μm laser radiation to aluminium alloys, *J. Appl. Phys.* 53 (4) (1982) 3190-3200.
- [23] Dreyfus R.W., Cu⁰, Cu⁺, and Cu²⁺ from excimer-ablated copper, *J. Appl. Phys.* 69 (3) (1991) 1721-1729.
- [24] Ho J.R., Grigoropoulos C.P., Humphrey J.A.C., Gas dynamics and radiation heat transfer in the vapor plume produced by pulsed laser irradiation of aluminium, *J. Appl. Phys.* 79(9) (1996) 7205-7215.
- [25] Geohegan D.B., Fast intensified-CCD photography of YBa₂Cu₃O_{7-x} laser ablation in vacuum and ambient oxygen, *Appl. Phys. Lett.* 60 (22) (1992) 2732-2734.
- [26] Angleraud B., Girault C., Champeaux C., Garrelie F., Germain C., Catherinot A., Study of the expansion of the laser ablation plume above a boron nitride target, *Appl. Surf. Sci.* (96-98) (1996) 117-121.
- [27] Puretzky A.A., Geohegan D.B., Haufner R.E., Hetrich R.L., Zheng X.Y., Compton R.N., Laser ablation of graphite in different buffer gases, in : Miller J.C., Geohegan D.B. (ed.), *Laser ablation mechanisms and Applications-II* (1993), AIP Conference Proceeding 288, pp. 365-374.

Abridged English Version

Monte-Carlo simulation of the laser-ablated particle transport under vacuum and background gas

This paper deals with a Monte-Carlo simulation of the laser-induced plasma plume expansion under both vacuum and background pressure. A method which authorizes the simulation with no size restrictions on laser spot width or ablated depth is presented.

For thermal vaporization of copper atoms by a KrF laser beam irradiation, at a laser flux of $17 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$, the evolution of the density and particles velocity distributions with time were studied. It is found that laser energy absorption by the plume of ejected species has dominant effects on the global features of the plume. A fraction of about 6 % of the incoming laser energy redistributed into kinetic energy through the recombination of ionic species leads to simulated results

of the expansion under vacuum in good agreement with experimental investigations of the plume (*figure 4*).

In the second part, the method is extended to the simulation of the expansion under a residual argon pressure of 100 Pa. A method of collisions computing is proposed, in order to calculate simultaneously all possible interactions (Cu-Cu, Cu-Ar, Ar-Ar). This allows us to follow both the motion of the evaporated particles and the background gas particles. Results show clearly the snowplow of the leading edge of the plume (*figure 5*), due to collisions between ejected and ambient gas particles. It is shown that the high density region in the plume is deficient in argon particles, which results from the motion of argon particles outside the plume, due to the differences in kinetic energy of these different species.