

Ablation réactive d'une cible de titane par un laser XeCl en présence d'Azote

J. Hermann, A.L. Thomann et C. Boulmer-Leborgne

Laboratoire GREMI, URA 831 du CNRS, Université d'Orléans, BP. 6759, 45067 Orléans cedex 2, France

Abstract: Time and space resolved emission and laser induced fluorescence (LIF) spectroscopic measurements were performed to investigate vaporization and plasma formation resulting from excimer laser irradiation of *Ti* targets in a low pressure N_2 atmosphere. Measurement series have been done by varying the laser intensity from the vaporization threshold at $25 MWcm^{-2}$ up to values of about $500 MWcm^{-2}$ typically applied in pulsed laser deposition processing of *TiN* films. Thus, we evidenced the transition from thermal evaporation to the high density plasma formation process, leading to the production of reactive species and high energy ions. An interesting result for the comprehension of the reactive deposition process was the observation of a quantity of dissociated and ionized nitrogen, moving with the plasma front in the direction of the substrate.

Dans les procédés de fabrication des couches minces par évaporation laser, la création d'un plasma au-dessus de la zone irradiée joue un rôle clé sur la qualité des dépôts [1]. Afin de comprendre les mécanismes de formation et de propagation du plasma, nous avons effectué des mesures spectroscopiques du panache de plasma, résolues dans le temps et dans l'espace. Plus précisément, nous nous sommes intéressés à la fabrication de *TiN* par ablation laser réactive. Un laser à excimère (*XeCl 308nm*) est utilisé pour évaporer une cible de *Ti* en présence d'un gaz ambiant à basse pression (10^{-3} à $1 mbar$). On fait varier l'intensité laser du seuil de vaporisation ($25 MWcm^{-2}$) jusqu'aux intensités typiquement utilisées dans le procédé de fabrication de dépôts de *TiN* par laser

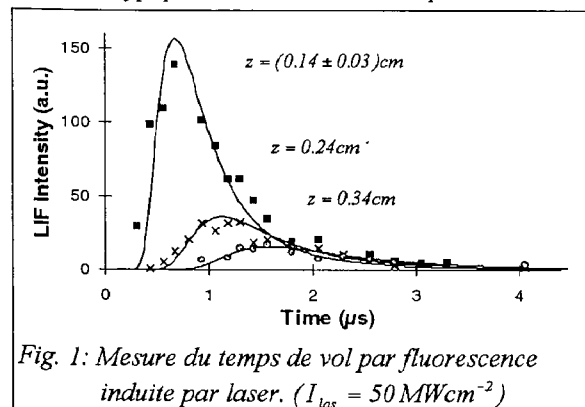


Fig. 1: Mesure du temps de vol par fluorescence induite par laser. ($I_{las} = 50 MWcm^{-2}$)

excimère ($\approx 500 MWcm^{-2}$).

Les observations optiques du plasma sont effectuées par deux méthodes complémentaires. A basse intensité laser, quand la vapeur métallique est peu ionisée et peu excitée, les atomes neutres de *Ti* dans l'état fondamental sont détectés par fluorescence induite par laser (LIF) à l'aide d'un laser à colorant accordé sur la transition $a^3F_2 \rightarrow y^3F_2$ à $398.17nm$. Dans

ces conditions, l'intensité LIF est proportionnelle à la densité d'atomes [2], ce qui permet de mesurer directement l'évolution spatio-temporelle de la densité de vapeur. Fig. 1 présente l'évolution temporelle de l'intensité de fluorescence dans le vide pour trois différentes distances par rapport à la surface de la cible. L'intensité laser est de $50 MWcm^{-2}$. On en déduit une vitesse la plus probable de $u_p \approx 2 \cdot 10^5 cms^{-1}$. Supposant une distribution de vitesses maxwellienne avec une vitesse du centre de masse [3], nous obtenons le meilleur fit pour une température de la couche de Knudsen de 5000K.

A plus grande intensité laser ($I_{las} \geq 100 MWcm^{-2}$), les espèces excitées sont observées par spectroscopie d'émission. Une bonne résolution spectrale ($\Delta\lambda < 10^{-3} nm$) a permis de mesurer l'élargissement Stark des raies des ions et des atomes neutres de la vapeur métallique et d'en déduire la densité électronique. La température électronique est obtenue à l'aide de la méthode du graphique de Boltzmann en mesurant en même temps l'intensité spectrale de plusieurs raies atomiques ou ioniques. Pour une intensité laser de $500 MWcm^{-2}$ nous obtenons $n_e \approx 10^{18} cm^{-3}$ et de $kT_e \approx 3eV$ à 100ns après l'impulsion laser. On en déduit que le plasma initial sur la surface a des valeurs $n_e \approx 10^{20} cm^{-3}$ et $kT_e \geq 10eV$. Ces valeurs sont peu influencées par la pression d'azote dans le domaine $p \leq 1mb$.

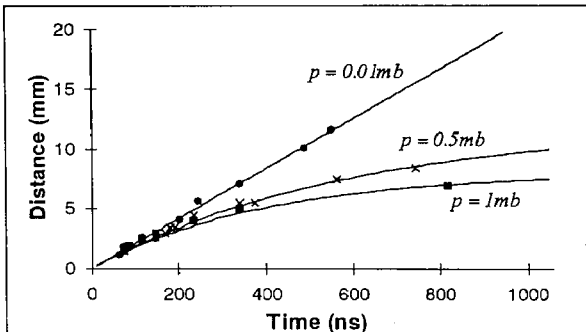


Fig. 2: Distance en fonction du temps qui correspond à l'émission maximale de TiIII ($I_{las} = 500 MWcm^{-2}$)

La comparaison de ce résultat avec des estimations théoriques de la quantité de matière évaporée par impulsion laser [4] permet de conclure que le plasma initial est complètement ionisé et partiellement absorbant pour la lumière UV du laser. Du fait du fort gradient de densité, un jet d'ions très énergétiques ($\approx 100eV$) se forme et se propage dans la direction du substrat. La Fig. 2 montre la distance d'observation en fonction du maximum

d'intensité du temps de vol pour $I_{las} = 500 MWcm^{-2}$ et trois différentes pressions. Pour une pression d'azote inférieure à $0.01mbar$, cette propagation se fait avec une vitesse constante, tandis qu'un ralentissement du jet par le gaz est observé pour des pressions plus grandes. On en déduit une section efficace de diffusion des atomes de titane dans l'azote moléculaire $\sigma \approx 5 \cdot 10^{16} cm^{-2}$.

A partir de $0.1mbar$, nous avons mis en évidence le transport d'une quantité d'azote dissocié sous forme de NI et NII avec le front de plasma vers le substrat. Cette création d'espèces réactives est essentielle pour la formation de la couche de TiN sur le substrat.

- [1]. J.T. Cheung and H. Sankur, CRC Critical Rev in Solid State and Material Scs., 15 (1), 63 (1988)
- [2]. J. Hermann, C. Boulmer-Leborgne, B. Dubreuil, I.N. Mihailescu, J.A.P., 71 (11), 5629 (1992)
- [3]. T. Gibert, B. Dubreuil, M.F. Barthe, and J.L. Debrun, J.A. P. 74 (5), 3506 (1993)
- [4]. J. Hermann, A.L. Thomann, C. Boulmer-Leborgne, B. Dubreuil, and I.N. Mihailescu, *Plasma Diagnostics in Pulsed TiN Layer Deposition*, soumis à J. Appl. Phys