

# El método de refractometría láser aplicado al proceso de ablación de Ti en una atmósfera de aire\*

Enrique J. Iglesias<sup>1\*\*</sup>, Vincent Piscitelli<sup>2</sup>, Ricardo Castell<sup>1</sup> y Alberto Fernández<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Departamento de Física, Universidad Simón Bolívar, Caracas. <sup>2</sup>Laboratorio de Espectroscopia Láser, Universidad Central de Venezuela, Caracas.

Recibido: 30-11-05    Aceptado: 10-04-06

## Resumen

La producción de revestimientos con plasmas generados por láser (PLD, Pulsed Laser Deposition) ha ganado gran popularidad como técnica de generación de películas de óxidos, nitruros, carburos o multicompuestos. En trabajos realizados previamente, hemos observado la necesidad de estudiar las características del plasma generado en la superficie de un blanco de titanio en presencia de aire, al enfocar el tercer armónico de un láser de Nd-YAG. El estudio se basa en la detección de la deflexión que se produce sobre un haz de prueba de He-Ne por los gradientes causados por ondas de densidad transientes de diversa naturaleza. El sistema tiene una resolución espacial de 0,1 mm y una resolución temporal de 10 ns, y está diseñado para evitar la luz emitida directamente por el plasma en la superficie del blanco. En el presente trabajo se muestran aspectos cuantitativos de la dinámica de las ondas de densidad transientes para una fluencia de  $15 \text{ Jcm}^{-2}$  a distintas presiones de aire. Los resultados se comparan en términos de parámetros cinéticos con otras mediciones similares y bajo el contexto del modelo de onda explosiva puntual.

**Palabras claves:** ablación, láser, refractometría, titanio.

## The beam deflection technique applied to Ti laser ablation, in an ambient gas

### Abstract

PLD coatings have an extensive use for producing nitrates, oxides, carbides and multilayer films for different applications, hence the interest in studying the process characteristics. We report studies on a laser produced plasma, with a 10 ns pulsed Nd-YAG laser, of Ti targets under air ambient at pressures from 1.5 to  $100 \times 10^3$  pa. We use a beam deflection system equipped to avoid, direct emitted light, so we are able to measure deflections close to the target surface. The system successfully measures the transient gradients of pressure caused by shock waves of different nature, with spatial and temporal resolutions of 0.1 mm and 10 ns respectively. Quantitative results on the nature and dependence of such waves as a function of ambient pressure and laser energy are presented. We apply a simple model of the mass profile propagation in order to infer values related to the kinetics of the particles present in the expanding plasma plume.

**Key words:** ablation, beam deflection láser, titanium.

\* Trabajo presentado en el V Congreso de la Sociedad Venezolana de Física, Universidad del Zulia. Nucleo Punto Fijo - Edo. Falcón, Venezuela, Noviembre 2005.

\*\* Autor para la correspondencia. E-mail: iglesias@usb.ve

## Introducción

La ablación de materiales con láser en presencia de un gas de fondo conduce a procesos dinámicos complejos en el gas cercano a la zona de impacto. Para la radiancia ( $\sim 10^9 \text{ Wcm}^{-2}$ ) y la longitud del pulso (ns) del láser, el proceso de ablación es de naturaleza térmica, por lo que la radiación del láser conduce, luego de un breve período de licuefacción, a la evaporación explosiva del sustrato en unos nanosegundos. Las partículas eyectadas avanzan con velocidades del orden de  $\text{km s}^{-1}$ , comprimiendo el gas y generando una onda de choque. En estas circunstancias, el gas modera el proceso de ablación y repercute directamente en aplicaciones como el micromaquinado o la producción de recubrimientos cerámicos. Incluso en metales, a pesar de que la fase líquida es pronunciada, la presencia de gas a fondo durante el proceso de ablación, es tan importante como el resto de los parámetros físicos que caracterizan el proceso de fusión (1).

La dinámica de un gas sometido al efecto expansivo de un plasma inducido por láser, bien sea depositando directamente la energía sobre el volumen del gas (2-3) o a través de la onda explosiva que se genera al enfocar el láser sobre un material sólido (4-5), se caracteriza por procesos que se pueden discernir entre sí haciendo uso de las diferentes escalas temporales en las que evolucionan. Por un lado, está la onda de choque propiamente dicha, la cual se propaga en el gas a velocidades comparables a la velocidad del sonido  $\sim 0,5 \text{ Km s}^{-1}$  en el medio. Esta velocidad, para los tamaños espaciales relevantes  $\sim \text{mm}$ , se traduce en una escala temporal en el rango  $\mu\text{s}$ . Detrás de esa onda de choque se desplaza una pluma de vapor metal-gas, cuando el láser incide en un sustrato sólido, o de plasma-gas, cuando el láser incide en el volumen del gas directamente. En ambos casos, el gradiente de temperatura y movimiento macroscópico se manifiestan a través de un

transiente de densidad que se propaga a una velocidad efectiva de  $\sim \text{ms}^{-1}$ .

Los dos procesos antes mencionados se observan en este experimento durante la ablación de un blanco de titanio en presencia de aire a presiones entre  $10^4$  y  $10^5$  pa (6-7). Cabe notar que existen otros fenómenos relacionados directamente con el plasma generado sobre la superficie del sustrato, los cuales no son objeto de atención en este trabajo. En ese caso, los electrones del plasma en la superficie del blanco tienen un efecto dominante sobre el índice de refracción del medio cercano y la evolución temporal  $\sim \text{ns}$  está determinada esencialmente por la duración del pulso del láser.

## Materiales y métodos

Existen variadas metodologías para estudiar la evolución de transientes de densidad en un gas: Schlieren, shadowgrafía o la deflexión de un haz de prueba, entre otros (8-10). La medición de la deflexión ( $\delta\varphi$ ) de un haz de prueba causado por la evolución temporal del gradiente del índice de refracción del medio es una técnica sencilla que mide la relación entre la  $\delta\varphi$  y la componente del gradiente promedio, perpendicular a la dirección de propagación del haz  $\langle \nabla_{\perp} n \rangle$ .

$$\delta\varphi \equiv \frac{\langle d_p \nabla_{\perp} n \rangle}{n_0}$$

donde  $n_0$  es el índice de refracción del gas y  $d_p$  es la distancia recorrida por el haz de prueba en el medio.

La técnica ofrece ventajas obvias: primero, la simplicidad del sistema, el cual requiere solo de un detector de segmentado y óptica sencilla; segundo, el registro continuo de la historia temporal del evento, con una resolución temporal del orden de  $\sim 10 \text{ ns}$  (8). Además, se puede diferenciar entre las contribuciones al índice de refracción debido a neutros (o iones) y electrones, los cuales desvían el haz de prueba en direcciones opuestas.

En este experimento, la ablación se realizó empleando un láser pulsado de Nd-YAG (Continuum, Surelite-I; 10 Hz), operando en su tercer armónico (355 nm), que emite pulsos de 8 ns de duración y  $\sim 20$  mJ de energía, para una fluencia de  $\sim 10$  Jcm<sup>-2</sup>. La señal de un detector de silicio registra el pulso del láser en cada disparo y se usa como referencia temporal para todas las trazas presentadas.

El haz es guiado mediante dos espejos dicróicos reforzados para la longitud de onda del láser con una reflectividad del 99% y enfocado sobre la muestra mediante un lente plano convergente de cuarzo con distancia focal de 25 cm. La muestra, un cilindro de titanio (Ti) con su eje de simetría perpendicular a la dirección de incidencia del láser que produce la ablación, se encuentra en una cámara provista con ventanas de cuarzo y acoplada a un sistema de alto vacío conformado por una bomba mecánica y una bomba turbomolecular. El gas se introduce a través de una válvula de aguja.

El sistema de deflexión (11) consta de un láser de He-Ne (haz de prueba) de 8 mW, el cual es expandido (X10) y enfocado ( $f = 20$ ) delante del blanco a la misma altura y posición del punto focal del haz principal (figura 1). La resolución del haz de prueba es de  $\sim 50$   $\mu$ m. Luego de pasar por el medio, el haz es recogido por una lente y reflejado posteriormente sobre una red de difracción de 1200 líneas por mm para separarlo de la luz emitida por el plasma cerca de la superficie del sustrato. El diámetro del haz es nuevamente reducido a 0,8 mm, e incide sobre un detector de segmentado configurado en dos hemisferios. Solo se midió la deflexión en la dirección del plano formado por la perpendicular a la superficie y el haz de Nd-YAG. La deflexión positiva corresponde a un gradiente negativo de la densidad de partículas neutras en la dirección del blanco.

La calibración del sistema es de  $\sim 10$  mV/mrad. La resolución es limitada por el nivel de ruido de la señal 0,5 mV, lo que

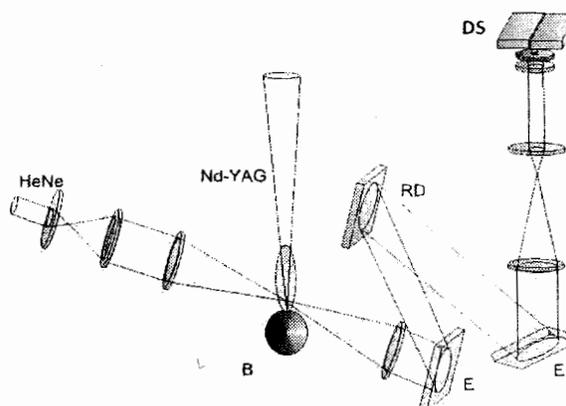


Figura 1. Montaje experimental. E: espejo. RD: red de difracción. DS: detector segmentado. B: blanco de Ti.

equivale a  $\sim 50$   $\mu$ rad. La historia temporal de la deflexión es registrada en un osciloscopio (Tektronix, TDS-3000B) que tiene una velocidad de adquisición de 2,5 GS/s. Cada traza temporal consta de un total de 128 pulsos, los cuales se promedian directamente en el osciloscopio.

## Resultados y discusión

Se efectuaron mediciones para presiones de fondo de aire de  $10^4$ ,  $4 \times 10^4$  y  $10^5$  pa. Las historias temporales (figura 2) se agrupan en dos tipos: los primeros 10  $\mu$ s y los primeros 400  $\mu$ s, que corresponden a las dos escalas dinámicas mencionadas anteriormente. Por razones de extensión solo se muestra el gráfico para presión atmosférica.

En la figura 2A (0 a 10  $\mu$ s) se observa claramente la presencia de un frente de choque en el aire, que se reconoce por la deflexión negativa en forma de pulso y se mantiene sin disiparse hasta distancias  $\geq 3$  mm. A distancias menores de 1 mm, la señal está dominada por la disminución de densidad que sigue al frente y se reconoce por su signo positivo. La velocidad de propagación del frente, a diferentes presiones de fondo, se muestra en la figura 3. Los valores medidos de la velocidad del frente se ubican dentro

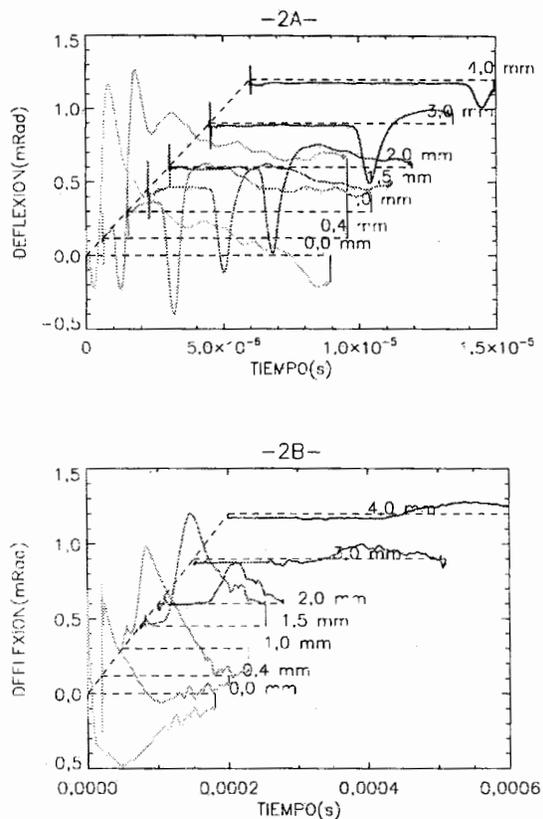


Figura 2. Deflexión vs. tiempo para una presión de 1 Atm de aire. Evolución temporal: A) en los primeros 10  $\mu$ s y B) durante 400  $\mu$ s.

del rango esperado, en comparación con mediciones sobre blancos de aluminio para fluencias del mismo orden (5). Los valores encontrados en la literatura en el caso del cobre (4) corresponden a fluencias tres veces mayores a la presentada en este trabajo, pero se correlacionan en lo que respecta a la tendencia y orden de magnitud.

Para tiempos posteriores  $\geq 100 \mu$ s, en la figura 2B (0 a 400  $\mu$ s) se observa una deflexión positiva seguida por una deflexión negativa, ambas evolucionando en una escala temporal  $\geq 50 \mu$ s. Para distancias mayores a  $d = 2$  mm, la deflexión negativa se separa de la onda de choque (pequeña de-

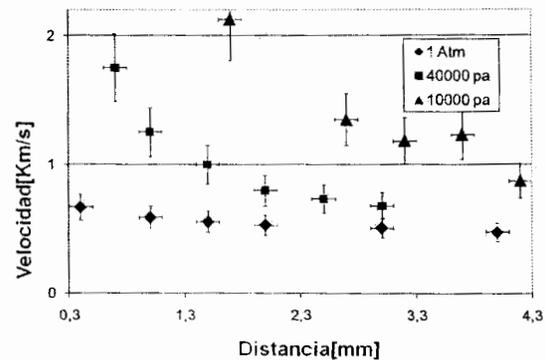


Figura 3. Velocidad vs. tiempo para la onda de choque. Los puntos experimentales corresponden a (♦) para presión atmosférica, a (■) para  $4 \times 10^4$  pa. y a (▲) para  $10^5$  pa.

flexión cercana a  $t = 0$ ) y viaja a una velocidad de  $\sim 15 \text{ ms}^{-1}$ . Al igual que en el caso anterior, la deflexión positiva representa una disminución de la densidad del medio, que eventualmente se reduce a la presión de fondo, produciendo, por lo tanto, un gradiente positivo y la correspondiente deflexión negativa. Esta disminución de la densidad se debe a la presencia (5) de una nube o pluma del material del blanco con una temperatura superior en su centro y una densidad menor al gas de fondo. Este hecho se comprueba por la disminución observada en la amplitud de estas deflexiones a medida que se reduce la presión de aire, lo cual reduce el efecto del gradiente de presión.

Para explicar la evolución de la onda de choque —pulso en la dirección negativa— que se observa en la figura 2A, acudimos al modelo de onda explosiva puntual (OEP) (12-13). De esta forma, se hace una analogía con el transiente de presión producido por el movimiento de un pistón en el aire cuando se asume que toda la energía disponible se deposita instantáneamente en un punto y se invierte en energía cinética del gas que es empujado. El modelo está limitado, en términos prácticos, a un punto focal pequeño y a una presión de fondo baja —en

comparación con la presión de la onda— y, por lo tanto, a materiales relativamente difíciles de erosionar y a cortas distancias del blanco. En tales condiciones, el tiempo ( $t$ ) que tarda una onda de choque esférica en recorrer una distancia ( $d$ ) cumple aproximadamente con la relación de  $t \propto d^{2.5}$ .

Considerando que el diámetro del punto focal es de  $0,4 \pm 0,1$  mm, y la fluencia sobrepasa el límite mínimo de ablación, se puede estudiar la aplicabilidad del modelo OEP a nuestras mediciones. En la figura 4 se muestra la relación entre el tiempo de propagación de la onda de choque  $t$  y la distancia desde la muestra  $d$  para las distintas presiones del gas de fondo. Es evidente que a medida que la presión de fondo disminuye, lo que causa un aumento de la proporción entre la presión inicial debida a la evaporación del material y la presión de fondo, los valores experimentales se acercan a la predicción del modelo OEP.

### Conclusiones

Se ha verificado la versatilidad y confiabilidad del método de deflexión de haz al comparar los valores obtenidos para titanio con el modelo de onda explosiva puntual de Sedov y con mediciones en aluminio y cobre realizadas por otros investigadores. Cabe notar que aunque el modelo es aplicable a la dinámica del gas de fondo al ser sometido a la ablación de un material por láser, su aplicabilidad es limitada si se trata de determinar el valor de la fracción de la energía inicial del pulso del láser depositada en la onda de choque (4-5).

Los resultados presentados son un primer paso en dos líneas de nuestro interés en esta área: monitorear en tiempo real la reproducibilidad del sistema a efectos de un estudio paramétrico del proceso de deposición de recubrimientos cerámicos y el estudio del efecto que pudiese causar el uso de un sistema pulsado de gas a alta presión para introducir el gas de fondo (14). También para el futuro inmediato se plantea

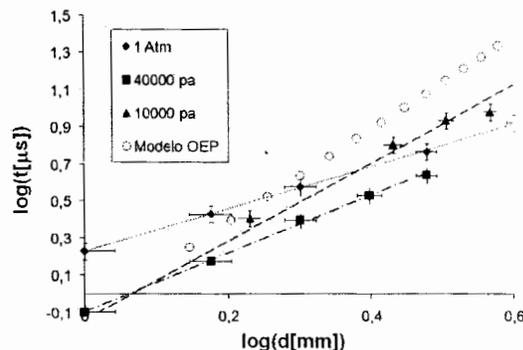


Figura 4.  $\log(t[\mu s])$  vs.  $\log(d[mm])$  para la onda de choque. Los (○) corresponden al modelo de onda explosiva puntual [13]  $t \propto d^{2.5}$ . Los puntos experimentales (◆) corresponden a  $t \propto d^{2.1}$  para presión atmosférica, a (■) para  $4 \times 10^4$  pa. y a (▲)  $t \propto d^{1.2}$  para  $10^4$  pa.

estudiar y correlacionar la espectroscopia de emisión en el visible tanto con la dinámica de la nube de plasma que se forma sobre el blanco como con el frente de ionización que sigue a la onda de choque (15).

### Referencias bibliográficas

1. ARNOLD J., STARK U., DAUSINGER F. *Proc ICALEO*. 74: 414, 1991.
2. SOBRAL H., VILLAGRÁN M., NAVARRO R., RAGA A.C. *Appl. Phys. Lett.* 77(20): 3158-3160, 2000.
3. VILLAGRÁN M., SOBRAL H., NAVARRO R., P. F. VELÁZQUEZ P.F., RAGA A.C. *Plasma Phys. Control Fusion* 45: 571-584, 2003.
4. CALLIES G., BERGER P., HUGEL H. *J. Phys. D. Appl. Phys.* 28: 794-806, 1995.
5. JEONG S.H., GREIF R., RUSSO R.E. *J. Phys. D. Appl. Phys.* 32: 2578-2585, 1999.
6. CASTELL R., RUIZ A., CASTELL C., SUÁREZ C. *Appl. Phys. A*. 69: S521-S522, 1999.
7. IGLESIAS E., PISCITELLI V., CASTELL R., FERNÁNDEZ A. *RIAO-OPTILAS*. Isla de Margarita, Venezuela, 2004.

8. ENLOE C.L., GILGENBACH R.M., MEACHUM J.S. *Rev. Sci. Instrum.* 58(9): 1597-1600, 1987.
9. SELL J.A., HEFFELFINGER D.M., VENTZEK P.L., GILGENBACH R.M. *Appl. Phys. Lett* 55(23): 2435-2437, 1989.
10. VENTZEK P.L., GILGENBACH R.M., SELL J.A., HEFFELFINGER D.M. *J. Appl. Phys.* 68(3): 965-968, 1990.
11. KNYAZEV B.A., GREENLY J.B., HAMMER D.A., KRASTELEV E.G., CUNEO M.E. *Rev. Scient. Inst.* 72(5): 2310-2321, 2001.
12. SEDOV L.I. *Similarity and dimensional methods in mechanics*. 10<sup>a</sup> ed., CRC Press, Boca Ratón (USA), pp. 236-251, 1993.
13. ZELDOVICH Ya.P., RAIZER Yu.P. *Physics of shock waves and high temperature hydrodynamic phenomena*. Academic Press, New York (USA), pp. 93-99, 1966.
14. WILLMOTT P.R., SPILLMANN H., HUBER J.R. *J. Mat. Chem.* 3: 397-402, 2002.
15. HARILAL S.S., BINDHU C.V., TILLACK M.S., NAJMABADI F., GAERIS A.C. *J. Appl. Phys.* 93(5): 2380-2388, 2003.