



**UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA  
DE MÉXICO**

**POSGRADO EN CIENCIAS FÍSICAS  
CENTRO DE CIENCIAS APLICADAS Y  
DESARROLLO TECNOLÓGICO**

**DIAGNÓSTICO RESUELTO EN TIEMPO DE PLASMAS  
DE ABLACIÓN DE GRAFITO INDUCIDOS  
CON DOS LÁSERES PULSADOS SINCRONIZADOS**

**T E S I S**

**QUE PARA OBTENER EL GRADO DE:  
MAESTRO EN CIENCIAS (FÍSICA)  
P R E S E N T A:  
ROBERTO SANGINÉS DE CASTRO**

**DIRECTOR DE TESIS: DR. HUGO MARTÍN SOBRAL**



Universidad Nacional  
Autónoma de México



**UNAM – Dirección General de Bibliotecas**  
**Tesis Digitales**  
**Restricciones de uso**

**DERECHOS RESERVADOS ©**  
**PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

Quien no quiere pensar, es un fanático;  
quien no puede pensar, es un idiota;  
quien no osa pensar, es un cobarde.

*Sir Francis Bacon*

# AGRADECIMIENTOS

A la Universidad Nacional Autónoma de México, por brindarme la posibilidad de tener una educación de calidad; en particular quiero agradecer al Posgrado en Ciencias Físicas y todos aquellos profesores que compartieron sus conocimientos conmigo.

Al Dr. Hugo Martín Sobral, por las atinadas observaciones para completar y corregir tanto el trabajo experimental como la redacción de esta tesis. No solo tutor y director de tesis, sino un amigo entrañable.

A los otros miembros de mi comité tutorial: el Dr. Mayo Villagrán Muniz y el Dr. José Ignacio Jiménez Mier y Terán, quienes me orientaron a lo largo de todo el proceso de estos estudios de maestría.

Al jurado de esta tesis: Dr. Arturo Robledo Martínez, Dr. Alejandro Cristian Raga Rasmussen, Dr. José Ignacio Jiménez Mier y Terán y Dr. Jaime de Urquijo Carmona, por las aportaciones que hicieron para tener un trabajo de mejor calidad.

A la M. en C.I.M. Citlali Sánchez Aké, con quien pasé horas y días interminables de mediciones en el laboratorio y de procesado de datos. Una excelente amiga y compañera de cubículo; sin ella posiblemente no hubiera llegado a este momento.

A Gabriela Elena Suárez Macías, muy querida amiga quien corrigió algunos detalles de la redacción de este trabajo, soportó todas mis quejas y siempre estuvo pendiente para apoyarme en cualquier cosa. El saber escuchar es una gran virtud, pero más aún, el decir esas palabras de aliento en el momento oportuno.

Al M. en C.I.M. Edgar Álvarez Zauco, comensal asiduo en las “horas del café” y con quien se puede tener charlas muy agradables en cualquier momento.

A todos los que de alguna u otra manera siempre me dieron esa palmadita en la espalda y me impulsaron a llegar a donde me encuentro en estos momentos. Siendo tantos, los agradecimientos serían más extensos que la propia tesis.

Al CONACYT, institución que a través de su Programa Nacional de Posgrado, financió estos estudios de maestría, siendo mi número de registro el 179735 de la Convocatoria Internet Junio-Septiembre 2003 III.

Al Programa de Apoyo a los Estudios de Posgrado (PAEP-UNAM), institución que financió la compra de material de laboratorio para la elaboración de este trabajo.

Y por último, pero no menos importante, al Laboratorio de Fotofísica del Centro de Ciencias Aplicadas y Desarrollo Tecnológico (CCADET-UNAM), y los proyectos de PAPIIT, del Dr. Mayo Villagrán y CONACyT, del Dr. Hugo Martín Sobral, los cuáles me proporcionaron una beca durante el proceso de elaboración de esta tesis.

# ÍNDICE

<b>RESUMEN</b>	1
<b>INTRODUCCIÓN</b>	3
1. Antecedentes	4
2. Objetivos y metodología	7
Referencias	8
<b>1. PLASMAS INDUCIDOS CON LÁSER: ABLACIÓN Y SUS APLICACIONES</b>	9
1.1. Concepto de plasma	9
1.2. Plasmas de ablación inducidos con láser	9
1.2.1. Rompimiento	10
1.2.2. Procesos involucrados en la ablación láser	11
1.2.2.1. Dependencia de la ablación con la duración del pulso láser	12
1.2.2.2. Dependencia de la ablación con la longitud de onda	13
1.3. Aplicaciones en el crecimiento de películas delgadas	14
1.3.1. Interacción del haz láser con el blanco	14
1.3.2. Expansión de los productos obtenidos: La pluma de plasma	16
1.3.3. Interacción de la pluma con el sustrato	17
1.3.4. Nucleación y crecimiento de la película delgada	17
1.3.5. Usos, ventajas y desventajas	18
1.4. Ablación con doble pulso láser	20
1.4.1. Películas de carbono tipo diamante	21
Referencias	23
<b>2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS DE LAS TÉCNICAS DE DIAGNÓSTICO PARA LA CARACTERIZACIÓN DE PLASMAS DE ABLACIÓN</b>	24
2.1. Espectroscopía óptica de emisión	24
2.1.1. Relaciones de equilibrio	24
2.1.1.1. Distribuciones estadísticas	25
2.1.1.2. Composición de un plasma en equilibrio termodinámico local	26
2.1.1.3. Equilibrio termodinámico y transiciones colisionales	27

2.1.2. Transferencia radiativa en plasmas en ETL dominados por colisiones	29
2.1.2.1. Espesor óptico y plasmas ópticamente delgados	31
2.1.3. Ancho y forma de líneas espectrales	33
2.1.3.1. Determinación de la densidad electrónica por efecto Stark	36
2.2. Interferometría de dos colores	38
2.2.1. Elementos de la teoría de interferencia e interferómetros	38
2.2.2. Interferencia de dos ondas monocromáticas	40
2.2.3. Dispersión de una onda electromagnética y refractividad óptica	43
2.2.4. Corrimiento de fase de una onda electromagnética interferente	48
2.3. Evolución dinámica del plasma	48
2.3.1. Fotografía de sombras	49
Referencias	52
<b>3. TÉCNICAS EXPERIMENTALES</b>	<b>53</b>
3.1. Diagnóstico de plasmas de ablación	53
3.2. Descripción del equipo	54
3.2.1. Láseres pulsados	55
3.2.2. Láseres de diagnóstico	57
3.2.3. Sistemas de detección	57
3.2.3.1. Espectrógrafo	57
3.2.3.2. Cámara ICCD	58
3.2.3.3. Tubo fotomultiplicador	59
3.2.3.4. Osciloscopio	60
3.2.4. Sistema de vacío	60
3.2.4.1. Medidores de presión	61
3.3. Desarrollo experimental	62
3.3.1. Generación de plasmas de ablación y sincronía entre láseres	62
3.3.2. Fotografía rápida	65
3.3.3. Interferometría de dos colores	67
3.3.3.1. Determinación de la diferencia de fase	70
3.3.4. Espectroscopía óptica de emisión	72
Referencias	76

<b>4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN</b>	<b>77</b>
4.1. Determinación de la densidad electrónica y de neutros por medio de interferometría de dos colores	77
4.2. Determinación de la temperatura y la densidad electrónica por medio de espectroscopía óptica de emisión	84
4.2.1. Identificación de especies	85
4.2.2. Determinación de la temperatura	88
4.2.3. Determinación de la densidad electrónica	94
4.3. Estudio de la dinámica del plasma	99
Referencias	108
<b>CONCLUSIONES</b>	<b>109</b>



## RESUMEN

El estudio de las propiedades de plasmas de ablación permite entre otras cosas, encontrar los parámetros experimentales óptimos a fin de mejorar la calidad de películas delgadas crecidas a través de la técnica PLD (*Plasma Laser Deposition*). El presente trabajo es un estudio de la interacción de dos de estos plasmas, generados con un láser pulsado de Excímero KrF emitiendo a 248 nm, sincronizado con un láser pulsado de Nd:YAG emitiendo a 1064 nm. Los láseres fueron enfocados sobre dos blancos perpendiculares de grafito, los cuáles se encuentran en el interior de una cámara de vacío a una presión de  $5 \times 10^{-6}$  Torr. El diagnóstico de estos plasmas y su interacción involucró la aplicación de diversas técnicas: *Interferometría de Dos Colores*, para determinar la densidad electrónica y de especies neutras; y *Espectroscopia Óptica de Emisión*, para determinar la temperatura y la densidad electrónica. *Fotografía Rápida*, para hacer un estudio sobre la evolución temporal de la distribución de las partículas emisoras de luz

Se hizo un estudio sistemático en función de la distancia en la dirección normal a la superficie del blanco del segundo pulso; así como con el retraso entre pulsos, a fin de analizar cómo afectan las partículas remanentes del primer plasma de ablación sobre el segundo. Los resultados obtenidos se contrastan con aquellos derivados del análisis del plasma de ablación generado con un pulso láser sobre el mismo blanco.

Este trabajo de tesis fue realizado en el Laboratorio de Fotofísica del Centro de Ciencias Aplicadas y Desarrollo Tecnológico (CCADET) de la UNAM, bajo la asesoría y dirección del Dr. Hugo Martín Sobral.

Los resultados del presente trabajo fueron presentados en los siguientes congresos:

- *XI Latin American Workshop on Plasma Physics*, 5-9 de Diciembre de 2005, México D.F., “*Time resolved diagnostic of dual-pulsed laser ablation on graphite targets*”, R. Sanginés de Castro, C. Sánchez-Aké, H. Sobral y M. Villagrán-Muniz.
- *Second Mexican Meeting on Theoretical and Experimental Physics*. 6-10 Septiembre de 2004, México D.F., “*Diagnostic techniques of plasmas produced by laser ablation*”, M. Villagrán Muniz, H. Sobral, C. Sánchez Aké, R. Sanginés de Castro, E. Sterling, F. Bredice.

Este último congreso incluyó una memoria en extenso: Villagran-Muniz M, Sobral H, Sanchez-Ake C, Sangines de Castro R, Sterling E, Bredice F. *Diagnostic Techniques of Plasmas Produced by Laser Ablation*. Materials Science and Applied Physics: 2<sup>nd</sup> Mexican Meeting on Mathematical and Experimental Physics, Mexico D.F. 6-10 de Septiembre de 2004. Editado por Hernández- Pozos y R. Olayo- González. American Institute of Physics, 2005.

Asimismo, el análisis del plasma realizado por Interferometría de Dos Colores se encuentra en revisión, para considerar su publicación en *Applied Physics A* con el título: “*Electron and neutral density determination at early stages of dual-pulsed laser ablation plasmas*”, R. Sanginés de Castro, H. Sobral, C. Sánchez-Aké and M. Villagrán-Muniz. Actualmente se encuentra en preparación un trabajo con los resultados del diagnóstico de la interacción de los plasmas por Espectroscopía Óptica de Emisión, que será enviado próximamente para que se considere su publicación en *Journal of Applied Physics*.

## INTRODUCCIÓN

La técnica de depósito de películas delgadas por medio de ablación de materiales con láseres pulsados (*Pulsed Laser Deposition*, PLD) ha tenido un gran desarrollo en los últimos veinte años. Ésta consiste básicamente en utilizar un pulso láser de alta potencia como fuente de energía para la extracción de material de un blanco cualquiera, material que posteriormente es depositado en un sustrato. El blanco y el sustrato se encuentran dentro de un reactor conectado a un sistema de vacío, mientras que el láser se encuentra fuera del mismo. Esta característica hace que la técnica sea flexible y fácilmente adaptable a otros modos de operación sin las restricciones impuestas por el uso de fuentes de evaporación internas.

En contraste con la simplicidad del diseño experimental, la interacción entre el láser y el blanco es un fenómeno físico muy complejo. El mecanismo que permite la ablación del material depende de las características del láser, así como de las propiedades ópticas, topológicas y termodinámicas del blanco. Cuando la radiación láser es absorbida por una superficie sólida, inicialmente la energía electromagnética es convertida en excitación electrónica y después en energía térmica, química e incluso mecánica que como consecuencia provocan evaporación, ablación, excitación, exfoliación y la formación de plasma. Las partículas ablacionadas forman una pluma compuesta de una mezcla de especies energéticas incluyendo átomos, moléculas, electrones, iones y clusters (partículas sólidas de tamaño micrométrico). La longitud de camino libre medio de las especies es pequeña dentro de la pluma densa, de modo que las colisiones aumentan. Luego, la pluma rápidamente se expande desde la superficie del blanco, formando un flujo hidrodinámico en forma de jet. Las partículas que constituyen esta pluma son depositadas sobre el sustrato.

Una de las desventajas más importantes en PLD, es el efecto salpicadura (*splashing*), el cual consiste en la eyección de partículas micrométricas desde el blanco que se incorporan a la película delgada. Un método para reducir la salpicadura fue propuesto en 1982 por Gaponov y colaboradores.<sup>1</sup> Éste consiste en hacer interactuar dos flujos sincronizados de plumas generadas por láseres pulsados. Adicionalmente, como consecuencia de las colisiones producidas, las partículas eyectadas cambian tanto de dirección como de velocidad.

La ablación de blancos de grafito para el crecimiento de películas delgadas de carbono tipo diamante requiere tanto de un control de la energía cinética de las partículas, como así también minimizar el efecto salpicadura. Ambos requisitos son satisfechos bajo la configuración de doble pulso. Sin embargo, los procesos físicos involucrados y el control de los parámetros experimentales han sido poco estudiados.

En este trabajo se realiza un estudio de las propiedades físicas de plasmas de ablación perpendiculares de grafito inducidos por dos láseres pulsados sincronizados.

## 1. ANTECEDENTES

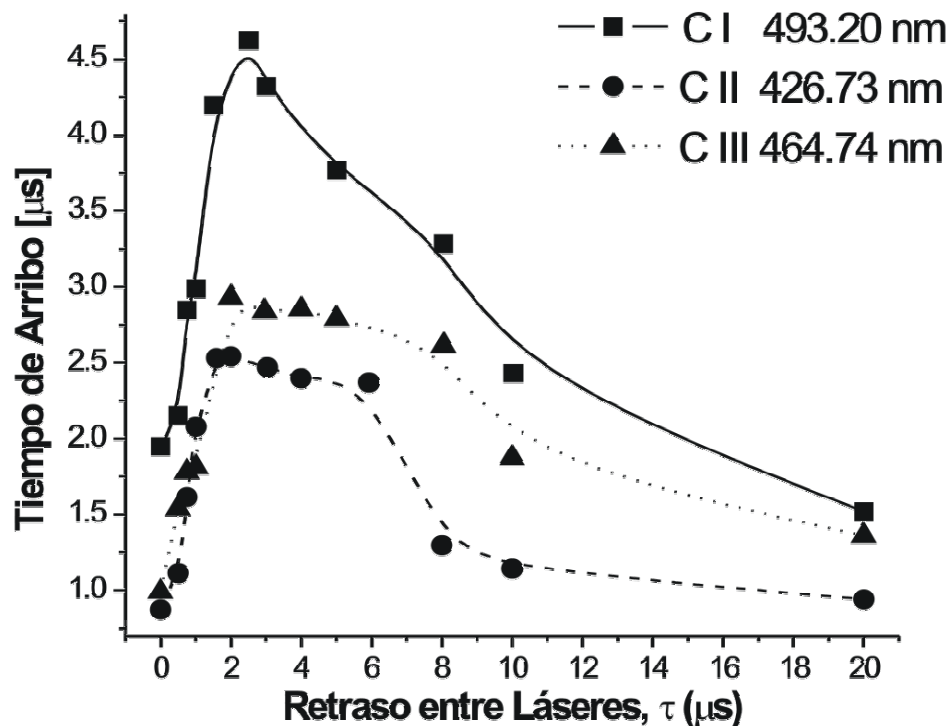
Han sido reportadas en la literatura diferentes configuraciones de PLD con doble pulso. Entre ellas se encuentran: un haz láser dividido en dos para ablacionar simultáneamente dos blancos;<sup>1</sup> dos haces láser que son separados por un retraso temporal para producir ablación en un mismo blanco;<sup>2</sup> y sincronización temporal de dos haces de láseres con diferente ancho temporal de los pulsos (un pulso dentro de otro).<sup>3-5</sup> Aunque aumenta la complejidad del proceso de ablación bajo estas configuraciones, hay importantes razones para el uso de dos láseres pulsados. Una aplicación clave de la ablación con dos láseres es que representa una solución para el efecto salpicadura. La presencia de este efecto en las películas crecidas por PLD es un serio problema que ha sido uno de los principales obstáculos en la introducción a gran escala de esta técnica.

Los trabajos anteriormente mencionados muestran una comparación entre las características del plasma inducido por doble pulso y las propiedades de las películas depositadas. Sin embargo, con excepción del trabajo de Witanachchi,<sup>2</sup> ninguno de los otros realiza un estudio sistemático de los fenómenos ocurridos en el plasma; a pesar de que el entendimiento de éste es esencial para mejorar las características de las películas. Se sabe que los parámetros del plasma, tales como energía cinética de las especies, densidad, grado de ionización, etc. son críticos en la formación de la película delgada. Aunque se han realizado varios trabajos utilizando ablación con dos láseres pulsados (*Dual-Pulsed Laser Ablation*, DPLA) no está entendido qué es lo que pasa durante la interacción de los dos plasmas.

Un trabajo que estudia la configuración de DPLA es el de Camps y colaboradores,<sup>6</sup> donde un láser Nd:YAG emitiendo a 1064 nm es dividido en dos haces que son enfocados sobre dos blancos de grafito perpendiculares. Como resultado de la interacción de los dos plasmas, se observaron cambios en las energías cinéticas de las especies de C I (carbono neutro), C II (carbono una vez ionizado) y C III (carbono dos veces ionizado). A distancias cercanas a los blancos, las velocidades de dichos iones aumentan en comparación a los iones producidos por un solo plasma, de modo contrario, a distancias lejanas (> 3cm) las velocidades disminuyen. Bajo esta configuración, se depositaron películas de carbono tipo diamante (*Diamond-Like Carbon, DLC*) que mostraron reducción en el efecto salpicadura así como un incremento en la cantidad de enlaces de diamante ( $sp^3$ ), en comparación con las películas crecidas usando un solo plasma.

Luego, en el Laboratorio de Fotofísica del CCADET-UNAM se han desarrollado trabajos de DPLA en blancos de grafito, en los que se ha estudiado sistemáticamente la energía cinética de las especies de la pluma. El primero de ellos,<sup>7</sup> consiste en realizar DPLA sobre un mismo blanco de grafito. La evolución temporal del plasma de grafito fue analizada por Espectroscopía Óptica de Emisión con el fin de estudiar las condiciones de máxima intensificación de las líneas espectrales, con respecto a las generadas en la configuración de un pulso. En este trabajo se utilizaron dos láseres pulsados Nd: YAG emitiendo a 1064 y 532 nm, en donde el retraso entre láseres ( $\tau$ ) fue variado desde la escala de nanosegundos hasta microsegundos. La mayor intensificación ocurre para  $\tau = 700$  ns, asimismo se encontró que la intensificación se incrementa cuando se aumenta la distancia de observación con respecto a la superficie del blanco. Además, se hizo un estudio del tiempo de vuelo (*Time of Flight, TOF*) de las especies, determinándose de esta forma, su energía cinética; para esto, se colectó la luz del plasma a diferentes distancias del blanco hasta 7 cm. Las curvas del TOF fueron obtenidas graficando la máxima intensidad de la línea de emisión en función del tiempo para cada distancia. La máxima intensidad de estas curvas es llamada tiempo de arribo (*Time of Arrival, TOA*). Se encontró que los tiempos de arribo se incrementan justo cuando las líneas espectrales se intensifican. Esto es una evidencia de que hay una fuerte dependencia entre la energía cinética de los iones con el retraso entre láseres y, en consecuencia es posible controlar la velocidad de los mismos.

A fin de continuar esta línea de investigación, se realizó un segundo trabajo en DPLA,<sup>8</sup> para estudiar la interacción de dos plasmas de ablación de grafito perpendiculares inducidos con dos láseres pulsados sincronizados. La evolución temporal del plasma fue analizada por Espectroscopía Óptica de Emisión, con el objetivo de encontrar bajo que condiciones de retraso entre pulsos, se tiene una máxima disminución de la energía cinética de las especies. Los plasmas fueron generados por un láser de Nd: YAG ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ) y por un láser de excímero KrF ( $\lambda = 248 \text{ nm}$ ). En este trabajo se hizo una comparación del TOA de las especies del plasma en la configuración de doble pulso, con el correspondiente en la configuración de un pulso. Para el experimento de doble pulso, el primer plasma fue generado por el láser de Nd: YAG, y el segundo plasma, por el láser de KrF. Se hizo un estudio sistemático del TOA de C I, C II y C III a diferentes distancias en la dirección normal al blanco del segundo pulso, en donde el retraso entre láseres fue variado desde  $\tau = 0$ , hasta una escala de microsegundos. El principal resultado encontrado es mostrado en la Fig. I.1.



**FIGURA I.1.** Tiempo de arribo de las especies en función del retraso entre láseres en un plasma de ablación de grafito inducido con doble pulso en dos blancos perpendiculares. El estudio fue realizado a una distancia de 4 cm del blanco del segundo pulso, una distancia entre focos de 8 mm y fluencias de 35 y 25  $\text{J cm}^{-2}$  para el láser de KrF y Nd: YAG respectivamente.

Esta figura es un gráfico de tiempo de arribo, contra el retraso entre láseres a una distancia al blanco del segundo pulso de 4 cm, una distancia entre focos de 8 mm y fluencias de 35 y 25 J-cm<sup>-2</sup> para el láser de KrF y Nd: YAG respectivamente. Se puede observar que el mayor TOA para todas las especies observadas se encuentra en el intervalo  $2 \mu\text{s} \leq \tau \leq 5 \mu\text{s}$ . Esto implica que, para este intervalo de retraso entre láseres, las especies del segundo plasma disminuyen su energía cinética. De esta forma, haciendo DPLA en dos blancos de grafito perpendiculares, es posible controlar la energía cinética de las especies mediante el retraso entre láseres.

## 2. OBJETIVOS Y METODOLOGÍA

El objetivo de esta tesis es realizar un diagnóstico de dos plasmas de ablación generados sobre dos blancos de grafito perpendiculares entre sí, por dos láseres pulsados sincronizados. Se analiza el plasma inducido por el segundo pulso, cuantificando los cambios que sufre éste al interactuar con las partículas remanentes de la pluma inducida previamente.

Los plasmas de ablación fueron generados a una presión de  $5 \times 10^{-6}$  Torr y analizados mediante Interferometría de Dos Colores, que permite determinar la densidad electrónica y de neutros del plasma; Espectroscopía Óptica de Emisión, que proporciona la temperatura y la densidad electrónica; y Fotografía Rápida, con la cual se obtiene la dinámica de la pluma.

Se estudiaron las características mencionadas anteriormente para diversos retrasos entre pulsos; sin embargo, la caracterización del plasma de ablación se concentró para el intervalo de retraso comprendido entre 2 y 5  $\mu\text{s}$ . Esto se debe a resultados encontrados en trabajos previos,<sup>8</sup> siendo éste el intervalo para el cual se consigue un mayor control en la energía cinética. En todos los casos, siempre se analiza el plasma inducido por el segundo pulso láser, determinando los efectos que sufre debido a la interacción con las partículas remanentes producidas por el primer plasma de ablación. Los resultados obtenidos de la interacción de dos plasmas son contrastados con las propiedades físicas que tiene un plasma de ablación inducido bajo la configuración de un pulso láser.

**REFERENCIAS**

1. S.V. Gaponov, A.A. Gudkov and A.A. Fraerman. *Sov. Phys. Tech. Phys.* **27**, 1130 (1982).
2. S. Witanachchi, K. Ahmed, P. Sakthivel and P. Mukherjee. *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1469 (1995).
3. P. Mukherjee, S. Chen, J.B. Cuff and S. Witanachchi. *J. Appl. Phys.* **91**, 1828 (2002).
4. P. Mukherjee, S. Chen, J.B. Cuff and S. Witanachchi. *J. Appl. Phys.* **91**, 1837 (2002).
5. G. Koren, R.J. Baseman, A. Gupta, M.I. Lutwyche and R.B. Laibowitz. *Appl. Phys. Lett.* **56**, 2144 (1990).
6. E. Camps, L. Escobar-alarcón, E. Haro-Poniatowski and Fernández-Guasti. *Appl. Surf. Sci.* **197-198**, 239 (2002).
7. C. Sánchez Aké, H. Sobral, E. Sterling and M. Villagrán Muniz. *Appl. Phys. A.* **79**, 1345 (2004).
8. C. Sánchez-Aké, H. Sobral, P. Ramos-Alvarez, C. Lemen and M. Villagrán-Muniz. "Ion kinetic energy control in dual-pulsed laser ablation on graphite targets" aceptado para su publicación en *J. Phys.: Conference Series*.



## CAPÍTULO 1

# PLASMAS INDUCIDOS CON LÁSER: ABLACIÓN Y SUS APLICACIONES

### 1.1. CONCEPTO DE PLASMA

Un plasma se define como un gas parcial o totalmente ionizado. La ionización ocurre de diversas maneras: cuando un material es calentado lo suficiente como para que el movimiento térmico de los átomos provoque el rompimiento de la estructura del material, por impacto electrónico, por incidencia de radiación electromagnética al material, etc. En estas nubes ionizadas ocurren gran cantidad de fenómenos relacionados con la aparición de campos eléctricos y el movimiento de cargas eléctricas dentro de las mismas. Este movimiento de cargas eléctricas emitirá radiación electromagnética, ya sea con un espectro continuo (Radiación Brehmsstrahlung), o con un espectro discreto (desexcitación molecular, atómica o iónica). Si el plasma no tiene una fuente continua de excitación y/o de confinamiento, eventualmente la nube ionizada se expande y enfría alcanzando así el equilibrio; esto es, los iones capturarán electrones libres y, una vez convertidos en átomos o moléculas neutras, tratarán de alcanzar un estado de mínima energía electrónica.

Existen diversas formas de obtención de un plasma. Típicamente, esto se puede lograr con diferencias de potencial suficientemente grandes, fotones muy energéticos o cavidades resonantes de radiofrecuencia.

### 1.2. PLASMAS DE ABLACIÓN INDUCIDOS CON LÁSER

Un pulso láser con energía suficiente puede generar un plasma sobre un blanco debido a la interacción de la materia con la radiación láser. Este proceso es denominado *rompimiento* del material.<sup>1,2</sup>

Los láseres de alta potencia usados para producir plasmas, son láseres pulsados que operan en la región infrarroja a ultravioleta, típicamente con pulsos que duran un tiempo del orden de nanosegundos. La energía del pulso requerida depende de diversos factores incluyendo las propiedades de éste (energía, longitud de onda, duración) y de la muestra (reflectividad, densidad, etc.)

La palabra ablación significa erosión o extracción de algo; así, se puede inferir que este proceso en un material implica la remoción de partículas del mismo. La *ablación láser* consiste en la interacción de la luz con la materia y se refiere al calentamiento en la superficie del material debido a los fotones energéticos que inciden en él y que causan la eyección del mismo mediante la formación de un plasma.

Un plasma de ablación se caracteriza por el calentamiento del material, la expulsión de iones en una pluma de plasma, y la posterior expansión de una onda calorífica u onda de choque.<sup>3</sup>

### 1.2.1 Rompimiento

La obtención del rompimiento producido por el láser puede atribuirse a dos mecanismos:<sup>4</sup>

- Ionización del medio por absorción multifotónica.
- Ionización por cascada o avalancha.

La *absorción multifotónica* consiste en la ionización de un átomo o molécula al absorber varios fotones, el cual se resume en el siguiente proceso:



donde  $M$  es un átomo o molécula,  $M^+$  representa un ión,  $nh\nu$  representa a varios fotones.

La ionización por *cascada o avalancha* es un proceso que se inicia por medio de un electrón inicial que eventualmente genera una avalancha. Los electrones iniciales son electrones libres existentes al comienzo del pulso del láser y que pueden producirse por absorción multifotónica o por alguna impureza con bajo potencial de ionización. El proceso mediante el cual se logra la ionización es el siguiente:



En este proceso los electrones adquieren energía al ser acelerados por el campo eléctrico del láser y chocan con átomos neutros, si tienen la energía suficiente ionizan el medio y el proceso comienza nuevamente. A tiempos largos existe un proceso adicional que contribuye a reforzar los procesos de ionización subsecuentes, ya que la misma ionización inicial del gas produce una separación de carga espacial (iones positivos y electrones), que crea campos eléctricos extraordinariamente grandes. Por consiguiente, la concentración de electrones crece con el tiempo, produciéndose el rompimiento en cascada.

### 1.2.2. Procesos Involucrados en la Ablación Láser<sup>5</sup>

La ablación con un pulso láser ha sido analizada con modelos térmicos, mecánicos, fotofísicos, fotoquímicos y de defectos en el material. Estos modelos tratan de describir el proceso de la ablación mediante un único mecanismo dominante; por esta razón, los modelos se aplican sólo a un material en particular con un estrecho rango de parámetros. Una descripción más general requiere considerar diferentes mecanismos de interacción simultáneamente y el acoplamiento entre ellos. Algunos de los procesos para generar las diversas formas para tener la ablación de un material se describen a continuación.

#### 1. Ablación Térmica

El proceso comienza con la excitación del material por uno varios fotones. Si la energía de excitación es instantáneamente convertida en calor, el incremento en la temperatura cambia las propiedades ópticas del material y consecuentemente la absorción de la energía. El aumento en la temperatura del material puede resultar en ablación con o sin licuefacción del material.

Sin embargo, puede existir otra forma de lograr este tipo de ablación: el aumento de la temperatura induce esfuerzos en los componentes moleculares o atómicos del material. Estos esfuerzos también cambian las propiedades ópticas del material que también pueden resultar en ablación. Ahora, si estos esfuerzos son muy grandes podrían generar ablación explosiva.

## 2. Ablación Fotoquímica

Si la energía de los fotones es suficientemente alta, la excitación debida al pulso láser puede resultar directamente en rompimiento de enlaces. Como consecuencia, átomos, moléculas, cúmulos y fragmentos se desprenden de la superficie. Como alternativa se pueden producir defectos inducidos por luz que generan esfuerzos en el material y producir ablación. En ambos casos, los procesos tienen lugar, en principio, sin cambiar la temperatura de la superficie del material

## 3. Ablación Fotofísica

En la ablación fotofísica hay contribución de procesos térmicos y no térmicos, por lo tanto la ablación fotoquímica y la térmica se consideran casos límite de este mecanismo. De nueva cuenta, los defectos, esfuerzos y cambios volumétricos en el material tendrán una influencia determinante en el proceso.

Finalmente, es necesario relacionar los efectos de los láseres pulsados de alta potencia con la ablación de diversos materiales. No todos los tipos de radiación interactúan con un material de la misma manera, y aunque ya se habló de un valor umbral de fluencia (energía por unidad de área), es necesario considerar otras características del pulso, tal como su duración y su longitud de onda.

### 1.2.2.1. Dependencia de la Ablación con la Duración del Pulso Láser<sup>5</sup>

Dependiendo de su capacidad de repetición, actualmente un láser es capaz de generar pulsos con duraciones de nano, pico y femtosegundos. Cada uno de éstos interactúa con el material y el plasma de manera especial:

➤ *Pulsos de nanosegundos ( $10^{-9}$  s):* en este régimen, la remoción de material (ablación) se lleva a cabo fuera del equilibrio, y se puede deber a procesos microscópicos térmicos y no térmicos. Se ha establecido que la energía de excitación es proporcional al material removido, siempre y cuando la capa ablacionada por pulso sea del orden de la profundidad de penetración óptica. Aún cuando estos pulsos son cortos, los procesos térmicos influyen enormemente en el material y la luz incidente interactúa con el plasma, causando absorción parcial del pulso.

➤ Pulsos de pico y femtosegundos ( $10^{-12}$ - $10^{-15}$  s): Con los también llamados pulsos ultracortos, los efectos de apantallamiento y disipación térmica son reducidos significativamente con pulsos de picosegundos, mientras que con pulsos de femtosegundos, ya son despreciables. En estos casos, la remoción de material está muy localizada y requiere menos energía. Los procesos involucrados en ablación (térmicos, fotoquímicos y fotofísicos) son de mínima relevancia, entrando en juego otros procesos que se considerarían despreciables en pulsos de nanosegundos. Estos efectos pueden ser: absorción óptica no lineal, efectos fuera de equilibrio de excitaciones vibracionales, decaimiento en avalancha, ionización multifotónica y fenómenos de calentamiento supercrítico.

### 1.2.2.2. Dependencia de la Ablación con la Longitud de Onda<sup>6</sup>

La longitud de onda del láser,  $\lambda$ , cobra importancia en cuanto a la eficacia de la absorción de la energía del láser dentro del blanco. Para la mayoría de los metales, el coeficiente de absorción [Ver Ec. (1.3)] disminuye si  $\lambda$  también lo hace. Por tanto, la profundidad de penetración de la luz del láser es menor en el régimen ultravioleta que en el infrarrojo; sin embargo, esto no se cumple para materiales estructuralmente más complejos

Para otros materiales la variación del coeficiente de absorción con la longitud de onda es más compleja. Esta dependencia proviene de varios mecanismos tales como vibraciones de la red, impurezas, absorción de los portadores de carga, etc. Así, cada material, dependiendo de su coeficiente de absorción  $\alpha$ , o su parámetro de absorción  $B$ , reflejará o transmitirá la energía que incide sobre él.

Típicamente, un plasma de ablación en su fase expansión inicial alcanza densidades de  $10^{18}$   $\text{cm}^{-3}$  y temperaturas de 20,000 °K, muy por encima del punto de ebullición de cualquier material. Se cree que para estas temperaturas, el calentamiento se debe a bremsstrahlung inverso (absorción de fotones por electrones libres). El coeficiente de absorción,  $\alpha$ , para este proceso es:

$$\alpha = (3.69 \times 10^8) \frac{Z^3 N_i^2}{T^{1/2} \nu^3} (1 - e^{-h\nu/kT}) \text{cm}^{-1}, \quad (1.3)$$

donde  $Z$  es el número atómico,  $N_i$  la densidad iónica,  $h$  la constante de Planck,  $T$  la temperatura,  $k$  la constante de Boltzmann y  $\nu$  la frecuencia de la radiación incidente.

Aunque este modelo predice que habrá mejor absorción a longitudes de onda mayores, presenta severas limitaciones, ya que requiere condiciones particulares como una alta densidad de plasma o alta potencia del láser. Esto conduce a la necesidad de incorporar modelos dinámicos que combinen fenómenos radiativos, térmicos e hidrodinámicos para una descripción general y más completa.

### 1.3. APLICACIONES EN EL CRECIMIENTO DE PELÍCULAS DELGADAS<sup>6</sup>

La técnica de ablación láser para la síntesis de materiales en forma de película delgada ha tenido un desarrollo importante en años recientes. Esta técnica de depósito de películas delgadas se basa en la interacción de radiación láser pulsada de alta potencia con blancos sólidos contenidos en una cámara de vacío. La interacción da lugar a la remoción de material que puede estar parcialmente ionizado, formando así una nube o *pluma* de plasma característica de esta técnica. Esta pluma compuesta por partículas neutras, iones, electrones, átomos y cúmulos, se encargará de transportar el material hacia el sustrato donde se crecerá la película.

De manera general, puede considerarse que el proceso de depósito de películas delgadas por ablación láser consiste fundamentalmente de cuatro etapas.

1. Interacción del haz láser con el blanco.
2. Expansión de los productos obtenidos por la remoción de material del blanco en una nube o pluma.
3. Interacción de la pluma con el sustrato.
4. Nucleación y crecimiento de la película delgada sobre la superficie del sustrato.

#### 1.3.1. Interacción del Haz Láser con el Blanco

Cuando se irradia un sólido con fotones, uno de los efectos más importantes que ocurren es la expulsión de partículas del sólido cuando la energía de la radiación

electromagnética incidente es suficientemente alta. La ablación láser es consecuencia de la interacción de fotones suficientemente energéticos con la materia. Este proceso de interacción involucra el acoplamiento de la energía electromagnética con el sólido formando un plasma. De esta forma se eyectan átomos, iones, especies moleculares y fragmentos de material.

Para *materiales conductores*, los fotones incidentes son absorbidos y reflejados dependiendo de los coeficientes de absorción y reflexión de los materiales. En el caso de la absorción, la luz se transforma en energía térmica y se transporta hacia el interior del material, dependiendo de la conductividad térmica y el calor específico del blanco. Si la intensidad de la luz es suficientemente alta, la superficie del blanco se funde y como consecuencia el material se evapora, posteriormente las partículas evaporadas se ionizan y forman un plasma frente a la superficie del blanco haciendo que el mecanismo de ablación sea más complicado.

Cuando se trabaja con materiales que no tienen electrones libres, esto es, *materiales aislantes*, el proceso inicial del mecanismo de ablación es más complejo. La energía de los fotones necesita estar en el rango ultravioleta (UV) para que ocurra la absorción de fotones. Cuando la energía de los fotones es tal que la luz no puede ser absorbida directamente por el sólido, son necesarios otros procesos para iniciar el fenómeno de ablación y crear portadores de carga libres en el sólido; por ejemplo la absorción de la luz en defectos del material o en el caso de altas intensidades de luz láser, el proceso de absorción multifotón, que crea electrones libres.

Típicamente, si la densidad de energía es mayor a  $2.5 \text{ J/cm}^2$ , la superficie del blanco se calienta instantáneamente por encima de su temperatura de vaporización vía mecanismos de absorción lineal, absorción multifotón, rompimiento dieléctrico y otros mecanismos desconocidos. La temperatura de vaporización de la superficie se excede dentro de una fracción de la duración del pulso láser, la disipación de la energía por vaporización en la superficie es relativamente lenta comparada con la duración del pulso, de tal manera que antes de que la capa superficial pueda evaporarse, la temperatura y la presión en capas sub-superficiales alcanzan sus valores críticos, provocando que la superficie explote. La presión sobre la superficie irradiada debida al efecto de retroceso del material evaporado puede alcanzar valores de hasta  $10^{11} \text{ Pa}$ . Esta interacción

explosiva se ha descrito como no-térmica, y de hecho, las observaciones en el cráter producido por esta interacción no muestran signos de fusión. Como consecuencia de este aumento de presión, la densidad de la pluma aumenta y comienzan a ser relevantes efectos de expansión hidrodinámica. Como resultado, la mayoría de la luz incidente se absorbe en la pluma parcialmente ionizada, proceso que provoca el calentamiento del plasma y favorece la ionización y/o excitación del material evaporado. Esto resulta en que la pluma sea completamente ionizada y que prácticamente toda la radiación incidente se absorba en el plasma vía un proceso bremsstrahlung inverso.

### 1.3.2. Expansión de los Productos Obtenidos: La Pluma de Plasma

La segunda etapa del proceso tiene lugar algún tiempo después de iniciada la acción del láser a densidades de energía del orden de  $1 \text{ J/cm}^2$  y en el régimen de los nanosegundos. Cerca de la superficie del blanco el vapor es completamente ionizado formándose un plasma que comienza a absorber la radiación láser incidente. Este proceso provoca el calentamiento del plasma y favorece la ionización y/o excitación del material emitido, dando lugar a la formación de un plasma excitado, que al desexcitarse forma la característica *pluma* visible que distingue a la ablación láser.

Dicho plasma contiene átomos neutros, moléculas, iones en el estado base y en estados excitados, así como electrones energéticos. Los átomos y los iones sufren colisiones en la región de alta densidad del plasma cerca de la superficie del blanco, cuyo espesor es de algunos cientos de micras, y crean una expansión altamente direccional perpendicular a la superficie del blanco con velocidades iniciales  $\geq 10^4 \text{ m/s}$ . La distribución angular de las especies en el plasma, se ha medido experimentalmente, encontrándose una distribución del tipo  $\cos^n \theta$ , donde  $n$  depende de las propiedades del material y de la intensidad del pulso láser y  $\theta$  es el ángulo respecto a la normal del blanco.

En los instantes iniciales de la expansión el plasma se caracteriza por su elevada densidad, que en la región próxima al blanco es del orden de  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , y se produce una intensa interacción entre todas las partículas expulsadas del blanco que provoca una redistribución importante de la energía cinética de las especies contenidas en el plasma. La elevada densidad de las especies presentes en el plasma permite hacer una descripción del proceso de expansión en términos de un modelo macroscópico



hidrodinámico. Se considera la expansión del plasma como un proceso adiabático, en el que la energía térmica de las especies se convierte en energía cinética conforme el plasma se expande.

### **1.3.3. Interacción de la Pluma con el Substrato**

Los procesos de interacción de las partículas del plasma con la superficie del sustrato, son de gran importancia para la síntesis de materiales en forma de película delgada. La física de esos procesos depende fuertemente de la energía de las especies en el plasma, especies con energías  $E_i > 10$  eV pueden causar daño radiativo sobre la superficie del sustrato. Los iones con energías entre  $10^2$  y  $10^3$  eV crean defectos en la superficie del sustrato en forma de vacancias, o se pueden provocar procesos de interdifusión en la interfase. Si el depósito se realiza en presencia de una atmósfera reactiva, esto provocará el ensanchamiento de la distribución angular de las especies presentes en el plasma y como consecuencia, la composición y homogeneidad de las películas depositadas puede verse alterada. Además en este caso puede producirse una incorporación adicional de gases en las capas, ya sea por procesos de absorción en la superficie o por reacciones químicas en el plasma.

Por otro lado, en general cuando se realizan depósitos sobre sustratos a temperatura ambiente, las capas obtenidas son amorfas, por lo que es necesario realizar los depósitos sobre sustratos calientes para promover el crecimiento de estructuras cristalinas. También es posible depositar la película a temperatura ambiente, y realizar un tratamiento térmico posterior que promueva la cristalización.

### **1.3.4. Nucleación y Crecimiento de la Película Delgada**

En el último paso de nucleación y crecimiento de una película delgada, parte del material que compone a la pluma puede depositarse en el blanco o en las paredes de la cámara, sin embargo, la mayoría alcanza a llegar al sustrato donde ocurren fenómenos de nucleación y crecimiento. Estos procesos de nucleación y crecimiento de la película delgada después de la condensación de las partículas del plasma sobre la superficie del sustrato dependen de muchos factores, tales como: la densidad del flujo de vapor y su temperatura, el grado de saturación de vapor y la energía de los iones, entre otros.

Adicionalmente estos efectos, que dan lugar eventualmente a la formación de la película delgada, están influenciados no solamente por los eventos de ablación y de propagación de la pluma que tienen lugar inicialmente, sino también por los parámetros que caracterizan al sustrato, tales como su estructura, temperatura y morfología superficial.

Las condiciones de los procesos de nucleación y crecimiento en ablación láser difieren significativamente del caso estacionario del proceso de depósito por evaporación térmica convencional, y las peculiaridades de la formación de la película por ablación láser aún no se comprenden totalmente.

Por otro lado el hecho de que el plasma contenga especies con diferentes energías cinéticas, dará como resultado la formación de una red de defectos o vacancias. Esta red de defectos jugará el papel de centros adicionales de cristalización, favoreciendo el crecimiento epitaxial, es decir, a partir de una cara de un cristal de material se hace crecer un sustrato con la misma estructura cristalina, incluso a temperaturas más bajas en contraste con otras técnicas de crecimiento. Adicionalmente, los iones con alta energía cinética (100 - 2000 eV) producirán vacancias individuales que provocarán un incremento en el coeficiente de difusión que explicaría además la buena adhesión de las capas aún a bajas temperaturas de sustrato.

### **1.3.5. Usos, Ventajas y Desventajas**

La Deposición por Láseres Pulsados (*Pulsed Laser Deposition*, PLD) se ha convertido en los últimos años en una alternativa para la obtención de películas delgadas teniendo algunas ventajas respecto a otros procesos. En la actualidad existe una amplia gama de materiales depositados por esta técnica, la lista incluye: superconductores de alta temperatura crítica (BiSrCaCuO e YBaCuO), materiales magnéticos (BaFeO,  $\gamma$ -FeO, ZnFeO), ferroeléctricos (PbZr<sub>x</sub>Ti<sub>(1-x)</sub>, BaTiO<sub>3</sub>, PbTiO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub>), materiales ópticos (BSO, LiNbO, LiTaO), semiconductores (GaAs), metales (Au, Al, Cu, Co, Pt, Ti), polímeros (PMMA, PPS), carbono con estructura tipo diamante, entre otros.

Debido a su naturaleza, la técnica de ablación láser posee características intrínsecas que la distinguen de otras técnicas para la obtención de películas delgadas,

proporcionando adicionalmente ventajas especiales para el crecimiento de óxidos y de otros materiales químicamente complejos. De hecho una de las razones del éxito de la ablación láser se encuentra en sus características intrínsecas. Las principales ventajas de esta técnica son entre otras:

- *Transferencia congruente (conservación de la estequiometría)*: Bajo condiciones experimentales adecuadas, es posible conseguir que la película depositada tenga la misma composición del blanco. La transferencia congruente, es una consecuencia de la alta rapidez inicial de calentamiento y de erosión del blanco, vía mecanismos no térmicos. Esta característica coloca a la ablación láser en un lugar separado de técnicas de transferencia *incongruente* como por ejemplo *sputtering* y evaporación térmica.
- *Posibilidad de realizar depósitos en atmósfera reactiva*: Dado que no se necesitan haces de electrones o filamentos calientes dentro de la cámara de depósito, se pueden usar gases reactivos durante el depósito. Las especies energéticas en el plasma reaccionan fácilmente con las moléculas del gas para formar compuestos simples (óxidos, nitruros e hidruros), de tal manera que el depósito en atmósferas oxidantes a baja presión, como por ejemplo: O<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, o vapor de agua, combinado con la propiedad de transferencia congruente, permite crecer películas delgadas de alta calidad de sistemas multicomponentes difíciles de obtener mediante otras técnicas, por ejemplo, ferroeléctricos, ferritas, materiales cerámicos, etc.
- Deposición de cualquier material, desde elementos puros hasta compuestos de elevada complejidad, incluyendo aquellos de alta temperatura de evaporación.
- Es un proceso muy limpio, debido a que la fuente de energía utilizada para vaporizar se encuentra fuera de la cámara de evaporación.
- La técnica ofrece la capacidad de controlar el espesor de la película con buena precisión, lo que permite trabajar en sistemas de baja dimensionalidad donde se requieren espesores de unas cuantas monocapas.
- Bajo nivel de incorporación de impurezas, debido a la corta duración del proceso, típicamente del orden de unos cuantos microsegundos.

- Altas velocidades de depósito, resultado del alto vacío efectivo.
- Puede combinarse con otras técnicas de depósito para obtener configuraciones híbridas que permiten optimizar el proceso de depósito y mejorar las propiedades de las películas.

Las características anteriores permiten obtener películas con las propiedades deseadas (estructurales, eléctricas, ópticas, etc.) sin necesidad de realizar tratamiento posterior al depósito, por ejemplo tratamientos térmicos en atmósfera controlada. Sin embargo, a pesar de sus posibilidades y ventajas presenta dos inconvenientes importantes:

- La inhomogeneidad en el espesor de las películas resultado de la alta direccionalidad del plasma, limita el tamaño útil de las mismas a unos pocos  $mm^2$ .
- La presencia de partículas y/o gotas con diámetros que van desde  $0.1 \mu m$  hasta  $10 \mu m$  en la superficie de la película (salpicadura o *splashing*), afectando negativamente su utilización en aplicaciones ópticas o electrónicas.

#### **1.4. ABLACIÓN CON DOBLE PULSO LÁSER**

Tanto un haz láser, separado en dos haces, para ablación simultánea, o dos láseres diferentes sincronizados, con un retraso variable, pueden ser usados para el proceso de ablación con doble pulso. El desarrollo de esta modalidad para el crecimiento de películas delgadas ha sido la de proveer una solución para el problema del efecto salpicadura sobre las mismas, el cual ha sido el mayor obstáculo para el uso de PLD a gran escala.

Se ha demostrado<sup>7</sup> que la salpicadura en películas formadas con PLD usando este método se reduce significativamente si dos plumas generadas con dos láseres en blancos separados se intersectan. En este esquema, las plumas de los plasmas interactúan entre sí y las especies ligeras son redirigidas selectivamente hacia el sustrato. Por otro lado, las partículas pesadas no son deflectadas de su dirección original y por lo tanto no

alcanzan el sustrato. Se han hecho diversas variaciones de este arreglo experimental con el fin de entender la física que está detrás de este fenómeno.

El método de ablación con doble pulso láser ha sido utilizado posteriormente en distintas configuraciones, obteniendo películas de mejor calidad de diferentes materiales.<sup>8</sup> Asimismo, con la utilización de dos láseres sincronizados se ha reportado intensificación en la emisión de líneas espectrales de las especies del plasma,<sup>9-15</sup> lo cual resulta en un incremento del tiempo de vida de estas líneas. Por otro lado, se ha reportado que en los plasmas producidos por este medio hay un alto porcentaje de ionización,<sup>16</sup> y cambios en las energías cinéticas de las especies.<sup>7,17,18</sup> De este modo, la configuración que inicialmente fue propuesta para la reducción del *splashing* ha generado nuevas propiedades en el plasma y en consecuencia en las características de la película delgada.

#### 1.4.1. Películas Delgadas de Carbono Tipo Diamante<sup>19</sup>

Una aplicación interesante de ablación con dos láseres sincronizados es el depósito de películas de carbono como diamante (*Diamond like carbon*, DLC). Debido a que la energía de los iones durante el depósito juega un papel crítico en el crecimiento de este tipo de películas, la posibilidad de controlar estas energías y estudiar las características de las películas crecidas de ese modo, resulta una aplicación inmediata de ablación con dos láseres. Es de gran interés determinar cómo son estos cambios en la energía y densidad de iones con el fin de mejorar las características de las películas DLC. Los trabajos reportados en la literatura de crecimiento de películas por ablación con dos láseres (*Dual Pulse Laser Deposition*, DPLD) en sus diferentes configuraciones, sugieren que tanto el grado de ionización del plasma como las energías cinéticas de los iones sufren cambios debido a la interacción de los plasmas.

El carbono pertenece al reducido grupo de elementos químicos que pueden dar origen a diferentes tipos de estructura llamados alótropos. Los alótropos del carbono son: el diamante, el grafito y los fullerenos. Las propiedades de cada alótropo son diferentes, el diamante es el material más duro que se conoce, mientras que el grafito es muy blando; el primero es transparente a la luz visible y aislante, mientras que el segundo es opaco y conductor eléctrico. Esta versatilidad de los sistemas de carbono proviene de las posibles

hibridaciones de los enlaces C-C. Los átomos de carbono tienen una valencia de cuatro, lo que permite diferentes configuraciones de enlace denominadas  $sp^3$ ,  $sp^2$  y  $sp^1$ .

La estructura del diamante tiene la característica de que cada átomo de carbono está rodeado por otros cuatro átomos de carbono en las esquinas de un tetraedro regular y cada átomo está enlazado a sus vecinos por fuertes enlaces covalentes del tipo  $sp^3$ . La estructura del diamante es cúbica y la distancia C-C entre los vecinos más próximos es de 0.1544 nm, aproximadamente un 10% mayor que en el grafito. Por otro lado, el grafito se compone de una serie de capas plano paralelas con enlaces trigonales  $sp^2$ . Dentro de cada plano, el átomo de C está enlazado a otros tres átomos formando una serie de hexágonos continuos que pueden ser considerados como un arreglo bidimensional esencialmente infinito. El cuarto electrón de valencia no-hibridizado se aparea con otro electrón deslocalizado del plano adyacente mediante enlaces más débiles del tipo Van der Waals. En este caso la distancia C-C es de 0.1422 nm.

Las películas delgadas de carbono amorfo pueden formarse a partir de una mezcla de enlaces  $sp^2$  y  $sp^3$  entre átomos de carbono, o bien con átomo de otros elementos (N, B) presentes en el material. Esto le confiere a las películas delgadas de carbono amorfo una serie de diferentes propiedades que dependen entre otras cosas de la proporción de enlaces  $sp^2$  con respecto a los enlaces  $sp^3$ .

Las primeras películas de DLC fueron fabricadas por Aisenbeg y Chabot<sup>20</sup> utilizando una técnica de depósito por haz de iones. En general las películas de DLC tienen valores de dureza en el intervalo de 20 a 40 GPa, con contenidos de  $sp^3$  del 40 al 60% y densidades de 1.8 a 3 g·cm<sup>-3</sup>. Los enlaces  $sp^3$  presentes en estas películas son los que le confieren al material muchas de las propiedades similares a las del diamante.

## REFERENCIAS

1. X.T. Wang, B.Y. Man, G.T. Wang, Z. Zhao, Y. Liao, B.Z. Xu, Y.Y. Xia, L.M. Mei and X.Y. Hu. *J. Appl. Phys.* **80**, 1783 (1996).
2. L.S.T. Onge, M. Sabsabi and P. Cielo. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry.* **12**, 997 (1997).
3. S. Yalcin, D.R. Crosley, G.P. Smith and G.W. Faris. *Appl. Phys. B.* **68**, 121 (1999).
4. R.G. Root. Laser Induced Plasmas and Applications. Editado por L.J. Radziemsky, D.A. Cramers. (Marcell Dekker, USA, 1989).
5. D. Bäuerle. Laser Processing and Chemistry. 2<sup>nd</sup> edition. (Springer- Verlag, Germany, 1996).
6. D.B. Chrisey, G.K. Hubler. Pulsed Laser Deposition Films. (John Wiley, USA, 1994).
7. S.V. Gaponov, A.A. Gudkov and A.A. Fraerman. *Sov. Phys. Tech. Phys.* **27**, 1130 (1982).
8. E.V. Pechen, S.I. Krsnosvobodsev, G. Kessler, A. Ritcher, M. Panzer, O. Grossman and A. Tereisak, *Phys. Status Solidi A* **131**, 179 (1992).
9. J. Uebbing, J. Brust, W. Sdorra and F. Leis, K. Niemax. *Appl. Spectrosc.* **45**, 1419 (1991).
10. D.N. Stratis, K.L. Eland and S. Michael Angel. *Appl. Spectrosc.* **54**, 1270 (2000).
11. D.N. Stratis, K.L. Eland and S. Michael Angel. *Appl. Spectrosc.* **55**, 1297 (2001).
12. R. Sattmann, V. Sturm and R. Noll. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28**, 2181 (1995).
13. L. St-Onge, M. Sabsabi and P. Cielo. *Spectrochim. Acta Part B.* **53**, 407 (1998).
14. F. Colao, V. Lazic, R. Fantoni and S. Pershin. *Spectrochim. Acta Part B.* **57**, 1167 (2002).
15. M. Corsi, G. Cristoforetti, M. Giuffrida, M. Hidalgo, S. Legnaioli, V. Palleshi, A. Salvetti, E. Tognoni and C. Vallebona. *Spectrochim. Acta Part B.* **59**, 723 (2004).
16. S. Witanachchi, A. M. Miyawa and P. Mukherjee. *Mat. Res. Soc.* **617**, J3.6.1-6 (2000).
17. E. Camps, L. Escobar-Alarcón, E. Haro-Poniatowski and M. Fernández-Guasti. *Appl. Surf. Sci.* **197-198**, 239 (2002).
18. C. Sánchez-Aké, H. Sobral, E. Sterling and M. Villagrán-Muniz. *Appl. Phys. A.* **79**, 1345 (2004).
19. O. Olea Cardoso. Preparación de Películas Delgadas de Carbono utilizando un Plasma de Microondas tipo ECR. Tesis de Doctorado en Ciencias de Materiales. Facultad de Química, UAEM. (2004).
20. S. Aisenberg and R. Chabot. *J. Appl. Phys.*, **42**, 2953 (1971).

## CAPITULO 2

# FUNDAMENTOS TEÓRICOS DE LAS TÉCNICAS DE DIAGNÓSTICO PARA LA CARACTERIZACIÓN DE PLASMAS DE ABLACIÓN

En este capítulo se abordarán los fundamentos teóricos de cada una de las técnicas empleadas para el diagnóstico de los plasmas generados en este trabajo. El diagnóstico incluye estudiar la evolución dinámica del plasma mediante Fotografía de Sombras y Fotografía Óptica Rápida; asimismo se puede determinar la densidad electrónica y de especies neutras mediante Interferometría de Dos Colores; y por último, se determina la temperatura y la densidad electrónica mediante Espectroscopia Óptica de Emisión.

## 2.1 ESPECTROSCOPIA ÓPTICA DE EMISIÓN<sup>1,5</sup>

El análisis por espectroscopia óptica de emisión de un plasma de ablación inducido por láser permite determinar la temperatura electrónica del mismo, así como su densidad electrónica. Estos cálculos están basados en suponer que el plasma se encuentra en equilibrio termodinámico local, es ópticamente delgado y que el ensanchamiento de las líneas de emisión está dominado por el efecto Stark. En esta sección se establecerán algunas de las bases teóricas necesarias para poder aplicar esta técnica de diagnóstico.

### 2.1.1. Relaciones de Equilibrio

Un concepto muy poderoso en la espectroscopia de plasmas es el *Equilibrio Termodinámico Local* (ETL). Donde prevalece el ETL, los estados cuánticos específicos son aquellos pertenecientes a un sistema en completo equilibrio termodinámico en cada punto del espacio, tal y como se explicará a continuación.



### 2.1.1.1. Distribuciones Estadísticas

En equilibrio termodinámico completo, los distintos estados de un átomo o ión son poblados de tal manera que corresponden a una distribución macroscópica, la cual describe a la densidad  $N_n$  del estado cuántico  $n$ , que se puede obtener a través de un número máximo de distribuciones microscópicas que también especifican cuáles electrones están en el estado atómico  $n$ .

El número de distribuciones microscópicas que nos proporcionan la misma distribución macroscópica está dado por:

$$W = \frac{N!}{\prod_n N_n!}, \quad (2.1)$$

donde  $N$ : número de átomos o iones de la misma especie química y estado de ionización, lo cual implica que  $N = \sum_n N_n$ . El producto de  $N_n!$  en el denominador proviene del hecho que los electrones en el estado  $n$  son indistinguibles, por lo que se pueden intercambiar en  $N_n!$  formas distintas, sin que resulte una distribución macroscópica diferente.

Al considerar un equilibrio térmico, el sistema resulta ser un ensamble canónico; es decir, es un sistema que únicamente intercambia energía con los alrededores, manteniendo constante su volumen dado que  $N$  permanece fijo y cuya probabilidad de encontrarlo en el estado  $N_n$  está dada por:

$$\frac{N_n}{N} = \frac{\exp\left[\frac{-E_n}{kT}\right]}{\sum_n \exp\left[\frac{-E_n}{kT}\right]} \equiv \frac{\exp[-\beta E_n]}{Z(T)}, \quad (2.2)$$

donde  $\beta \equiv \frac{1}{kT}$ , y  $Z(T)$ : función de partición,  $E_n$ : energía del estado  $n$ ,  $T$ : temperatura absoluta,  $k$ : constante de Boltzmann.

En muchos casos, varios estados tienen la misma energía, es decir, son estados degenerados. En principio éstos pueden contarse usando tantos términos en la función de partición como niveles degenerados haya; sin embargo, es más conveniente redefinir  $N_n$  para referirnos a la suma de las densidades en los estados cuánticos de energía dada, e

introducir los pesos estadísticos  $g_n$ , los cuáles indican el número de tales estados. Entonces la Ec. (2.2) se puede escribir como:

$$\frac{N_n}{N} = \frac{g_n \exp\left[\frac{-E_n}{kT}\right]}{\sum_n g_n \exp\left[\frac{-E_n}{kT}\right]} \equiv \frac{g_n \exp\left[\frac{-E_n}{kT}\right]}{Z(T)}. \quad (2.3)$$

La proporción entre las densidades de átomos o iones de la misma especie química y el mismo estado de ionización en los diferentes estados de energía  $E_n$  y  $E_m$ , empleando la Ec. (2.3), es:

$$\frac{N_n}{N_m} = \frac{g_n \exp\left[\frac{-E_n}{kT}\right]}{g_m \exp\left[\frac{-E_m}{kT}\right]} = \frac{g_n}{g_m} \exp\left[-\frac{E_n - E_m}{kT}\right]. \quad (2.4)$$

El numerador y el denominador son llamados *factores de Boltzmann* asociados con los niveles de energía  $E_n$  y  $E_m$ .

### 2.1.1.2. Composición de un Plasma en Equilibrio Termodinámico Local

Existe el equilibrio termodinámico si se verifica que todas las temperaturas del sistema son idénticas. Esto no es posible en los plasmas de laboratorio debido a que la energía de radiación en la periferia no puede igualar a la del interior del plasma. Sin embargo, es posible considerar la condición de equilibrio termodinámico local (ETL) en el plasma, la cual, desde el punto de vista termodinámico, constituye una fuente de temperatura constante para el gas en una región específica. Esta condición se logra si se cumplen los tres tipos de distribución de energía (función de Planck para la radiación del cuerpo negro, la distribución de Boltzmann para la población de los estados excitados y la distribución de velocidades de Maxwell) para una misma temperatura simultáneamente.

De acuerdo a los mecanismos que se verifican en un plasma se pueden agrupar en dos categorías: excitación e ionización causadas por colisiones y por procesos radiativos, los cuales pueden ser de tres tipos: Emisión espontánea, emisión estimulada o absorción.

En ETL se considera que los procesos colisionales son más importantes que los radiativos, es decir, un estado excitado podría tener una mayor probabilidad de ser desexcitado por medio de una colisión, que a través de un proceso radiativo. Si la concentración electrónica es alta, la frecuencia de colisiones es elevada y predominan los procesos colisionales, mientras que, si las concentraciones son bajas los procesos radiativos controlan la dinámica del plasma. Entonces, cuanto más elevada es la frecuencia de colisiones en un plasma más rápidamente se alcanza el equilibrio termodinámico local.

### 2.1.1.3. Equilibrio Termodinámico y Transiciones Colisionales

La excitación y desexcitación de átomos a través de colisiones están representadas por el proceso:  $A + e^- + \Delta E \leftrightarrow A^* + e^-$ ; donde  $\Delta E$  es la energía cinética transferida hacia o desde el electrón y  $A^*$  representa la especie excitada. La sección transversal para estas interacciones depende tanto del momento de transición del átomo para el par de estados involucrados, así como de la velocidad  $v$  del electrón. La excitación debe suceder a una velocidad  $v_t$  definida por la conversión de toda la energía cinética del electrón en energía de excitación, es decir,

$$\frac{1}{2}mv_t^2 = E_m - E_n, \quad (2.5)$$

donde  $E_m$  es la energía del estado final y  $E_n$  la energía del estado inicial.

Para relacionar las tasas de transición colisional con las secciones transversales, se considera un electrón con velocidad  $v$  que incide sobre un cilindro de área unitaria y longitud  $v$ , el cual es atravesado en un tiempo unitario. Si la densidad de átomos blanco es  $N$ , entonces el cilindro contiene  $Nv$  átomos, y para una sección transversal colisional  $\sigma(v)$ , el área blanco total es  $Nv\sigma(v)$ , lo cual también nos da la probabilidad de colisión por unidad de tiempo, por electrón. Para obtener el número de colisiones por segundo y por unidad de volumen, la expresión anterior se debe multiplicar por la densidad de electrones con velocidad  $v$ ,  $dN_e(v)$ , e integrar sobre todas las velocidades. De esta manera se define la *tasa colisional* ( $C$ ):

$$C = \int_0^{\infty} v\sigma(v)dN_e(v) = N_e \int_0^{\infty} v\sigma(v)f(v)dv = N_e \langle v\sigma(v) \rangle, \quad (2.6)$$

donde  $f(v)$  es la función de distribución de velocidades electrónicas dada por la *distribución de Maxwell-Boltzmann*, expresada en la Ec. (2.7):

$$\frac{dN(v_x)}{N} = \frac{1}{\sqrt{\pi\alpha}} \exp\left[-\left(\frac{v_x}{\alpha}\right)^2\right] dv_x \quad (2.7)$$

con  $\alpha = \left(\frac{2kT}{m}\right)^{1/2}$  la velocidad más probable y  $\langle v\sigma(v) \rangle$  es el valor promedio de  $v\sigma$  pesado con la distribución de velocidades.

Entonces, las dos tasas colisionales (excitación y desexcitación) están dadas por:

$$\begin{aligned} C_{mn} &= N_e \langle v\sigma_{mn}(v) \rangle \rightarrow \text{excitación.} \\ C_{nm} &= N_e \langle v\sigma_{nm}(v) \rangle \rightarrow \text{desexcitación.} \end{aligned} \quad (2.8)$$

Ahora, el principio de la reversibilidad microscópica establece que en equilibrio termodinámico cada proceso debe balancearse por su inverso exacto. Aplicando esto a las tasas colisionales llegamos a que:

$$N_m C_{nm} = N_n C_{mn}, \quad (2.9)$$

donde  $N_m$  es la densidad en el nivel inferior y  $N_n$  es la densidad en el nivel superior. Esta ecuación se debe conservar para todo tipo de colisión.

También en equilibrio, la tasa total de transiciones radiativas del estado  $n$  al estado  $m$  y del estado  $m$  al estado  $n$  debe balancearse. Si  $N_n$  átomos están en el estado superior y  $N_m$  átomos están en el estado inferior, entonces:

$$N_n W_{mn} = N_m (S_{nm} + W_{nm}), \quad (2.10)$$

con  $W_{mn}$  Probabilidad de transición por absorción,  $S_{nm}$  Probabilidad de transición por emisión espontánea,  $W_{nm}$  Probabilidad de transición por emisión estimulada.

Si las poblaciones  $N_m$  y  $N_n$  no cambian en el tiempo, entonces, igualando el número total de transiciones por unidad de tiempo que excitan con aquellas que desexcitan se tiene que:

$$N_n \rho W_{mn} + N_n N_e C_{mn} = N_m S_{nm} + N_m \rho W_{nm} + N_m N_e C_{nm}, \quad (2.11)$$

donde  $\rho$  es la densidad de radiación a la frecuencia  $\nu_{mn}$ . Si  $N_e$  es muy pequeño, la Ec. (2.11) se reduce a la Ec. (2.10). En el otro extremo, si  $\rho$  es muy pequeña, entonces  $N_n N_e C_{mn} = N_m (N_e C_{nm} + S_{nm})$  es decir,

$$\frac{N_m}{N_n} = \frac{N_e C_{mn}}{N_e C_{nm} + S_{nm}}. \quad (2.12)$$

De la Ecuación (2.12) se puede ver que el equilibrio colisional es perturbado por la emisión espontánea. Si las condiciones son tales que:

$$N_e \gg S_{nm} / C_{nm} \quad (2.13)$$

entonces de las Ecs. (2.4, 2.9)

$$\frac{N_n}{N_m} = \frac{C_{nm}}{C_{mn}} = \frac{g_n}{g_m} \exp\left[-\frac{(E_n - E_m)}{kT}\right]. \quad (2.14)$$

Así, si se tiene una densidad electrónica suficientemente alta para satisfacer la Ec. (2.13), la densidad de la población es descrita por la ecuación de Boltzmann con el parámetro de temperatura  $T$  idéntico al de la distribución de velocidades electrónicas. Mediante un tratamiento completo se obtiene la densidad electrónica mínima para alcanzar ETL:<sup>6-8</sup>

$$N_e \geq 1.4 \times 10^{14} \sqrt{T} (E_m - E_n)^3 \text{ cm}^{-3}, \quad (2.15)$$

donde  $T$  es la temperatura en eV,  $E_m - E_n$  es la diferencia de energías entre el estado superior y el inferior en eV.

### 2.1.2. Transferencia Radiativa en Plasmas en ETL Dominados por Colisiones

En la vecindad de una línea espectral intensa, la emisión es dominada por la contribución de las transiciones entre los niveles  $m$  y  $n$ ; esto es, la potencia radiada por unidad de volumen y por unidad de ángulo sólido en un intervalo de frecuencia angular:

$$\varepsilon(\omega) = \frac{\hbar\omega}{4\pi} L(\omega) A_{nm} N_n, \quad (2.16)$$

donde  $L(\omega)$  es el contorno de línea (longitud de camino óptico de los fotones emitidos) normalizado  $\Rightarrow \int L(\omega) d\omega = 1$ ;  $A_{nm}$  es la probabilidad de transición,  $N_n$  es la densidad de átomos o iones en el estado superior.

La cantidad que se puede medir más o menos directamente es la intensidad  $I(\omega, \theta, b)$  de la radiación electromagnética que deja el plasma en el punto  $x = b$ , esto es, la potencia por unidad de área, ángulo sólido e intervalo de frecuencia. En general, ésta no sólo depende de  $\omega$ , sino también de la dirección  $\theta$ . Al calcular la radiación emitida, se considera el gradiente espacial de la intensidad a lo largo de la línea de emisión, el cual está determinado por la diferencia entre emisión y absorción, considerando despreciable la dispersión de los fotones:

$$\frac{d}{dx} I(\omega, \theta, x) = \varepsilon(\omega, x) - k(\omega, x)I(\omega, \theta, x), \quad (2.17)$$

donde  $\varepsilon(\omega, x)$  es el coeficiente de emisión para transiciones espontáneas,  $k(\omega, x)$  el coeficiente efectivo de absorción, el cuál es la diferencia entre los coeficientes de absorción real y emisión estimulada. Entonces,  $k(\omega, x)$  se puede expresar de la siguiente forma:

$$\begin{aligned} k(\omega, x) &\equiv \sigma_{mn}^a N_n(x) - \sigma_{nm}^i N_m(x) \\ &= \frac{\pi^2 c^2}{\omega^2} \frac{g_m}{g_n} A_{nm} N_n(x) \left( 1 - \exp\left[-\frac{\hbar\omega}{kT}\right] \right) L(\omega, x) \end{aligned} \quad (2.18)$$

donde  $L(\omega, x)$  es la misma para absorción y emisión si el plasma es dominado por colisiones y  $\sigma_{mn}^a, \sigma_{nm}^i$  son las secciones eficaces de absorción y emisión estimulada respectivamente.

La Ecuación (2.18) es válida sólo si ETL prevalece, entonces las densidades  $N_m$  y  $N_n$  en los estados superiores e inferiores de la línea están relacionadas por el factor de Boltzmann adecuado. Ahora, al despreciar la dispersión en plasmas en ETL dominados por colisiones, no se cometen errores muy grandes dado que, éstas despueblan el estado superior de la línea más rápido que con que se puebla debido a la absorción de fotones y, entonces, no hay tiempo suficiente para que exista dispersión. Las únicas líneas en las cuáles la dispersión es importante son las resonantes de las especies y estados de ionización más abundantes.

En ETL, los coeficientes de emisión y efectivo de absorción están relacionados por la Función de Planck,  $I_T(\omega)$ , para la intensidad de la radiación térmica isotrópica dada por la Ec. (2.19):

$$I_T(\omega) = \frac{\hbar\omega^3}{4\pi^3c^2} \left[ \exp\left(\frac{\hbar\omega}{kT}\right) - 1 \right]^{-1} \quad (2.19)$$

$$\Rightarrow \varepsilon(\omega, x) = k(\omega, x)I_T(\omega, x), \quad (2.20)$$

donde la Ec. (2.20) se prueba empleando las Ecs. (2.18, 2.19).

Ahora, cuando un plasma se encuentra en ETL, la temperatura en  $I_T(\omega, x)$  es la temperatura electrónica local e instantánea, la cual rige las poblaciones relativas en los diversos estados excitados.

Con todo lo anterior, la solución para la Ec. (2.17), empleando el método del factor integrante, es:

$$I(\omega, \theta, b) = \exp\left[-\int_a^b k(\omega, x)dx\right] \left\{ \int_a^b \exp\left[\int_a^x k(\omega, x')dx'\right] \varepsilon(\omega, x)dx + I(\omega, \theta, a) \right\}, \quad (2.21)$$

donde  $a$ : punto más lejano del plasma con respecto al punto de observación,  $b$ : punto más cercano del plasma con respecto al punto de observación.

### 2.1.2.1. Espesor Óptico y Plasmas Ópticamente Delgados

El *espesor óptico* ( $\tau$ ) de una fuente luminosa es una cantidad adimensional que determina la atenuación de un haz de luz que atraviesa un medio gaseoso de longitud  $L$  medida desde el interior del mismo hasta el punto más cercano del punto de observación (en este caso,  $x = b$ ). Está definido como:

$$\tau(\omega, x) \equiv \int_a^b k(\omega, x)dx - \int_a^x k(\omega, x')dx' = \int_x^b k(\omega, x')dx'. \quad (2.22)$$

Entonces, la Ec. (2.21) se puede expresar de la siguiente manera:

$$I(\omega, \theta, b) = \int_a^b \varepsilon(\omega, x) \exp[-\tau(\omega, x)]dx + I(\omega, \theta, a) \exp[-\tau(\omega, a)]. \quad (2.23)$$

Una línea de emisión es ópticamente delgada si los fotones emitidos en cualquier punto del plasma alcanzan al detector con una probabilidad despreciable de absorción en

la columna del mismo. Esto significa que  $\tau(\omega, x) \ll 1$  para toda  $\omega$ . Lo cual es equivalente a pedir que el camino libre medio de los fotones sea mucho mayor que las dimensiones de la columna del plasma.

Ahora, si el espesor óptico es muy pequeño, se dice que la fuente es *ópticamente delgada*, lo cual implica que  $\tau(\omega, a) \rightarrow 0$ , entonces  $I(\omega, \theta, b) - I(\omega, \theta, a) \approx I(\omega, \theta, a)$ . Desarrollando en serie de Taylor la ecuación (2.23) obtenemos que:

$$\begin{aligned} \lim_{\tau_a \rightarrow 0} I(\omega, \theta, a) &= \int_a^b \varepsilon(\omega, x) dx \\ &= \frac{\hbar\omega}{4\pi} A_{nm} \int_a^b L(\omega, x) N_m(x) dx \end{aligned} \quad (2.24)$$

A primer orden la integral sobre todas las frecuencias es independiente de la forma de la línea, entonces

$$\begin{aligned} \lim_{\tau_a \rightarrow 0} \int I(\omega, \theta, a) d\omega &= \frac{\hbar\omega}{4\pi} A_{nm} \int_a^b N_m(x) \int L(\omega, x) d\omega dx \\ &= \frac{\hbar\omega}{4\pi} A_{nm} \int_a^b N_m(x) dx \end{aligned} \quad (2.25)$$

ya que  $L(\omega, x)$  es la única cantidad que depende críticamente de la frecuencia, pero que además, está normalizada.

Se renombra  $\int_a^b N_m(x) dx \equiv N_m$  como el número de átomos en el estado  $m$  por unidad de área a lo largo de la línea de emisión y  $\int I(\omega, \theta, a) d\omega \equiv I$  como la intensidad total integrada sobre el contorno de línea, es decir, es la emisividad total. Por lo tanto la Ec. (2.25), se puede ver de la forma

$$I = \frac{\hbar\omega}{4\pi} A_{nm} N_m \quad (2.26)$$

para plasmas ópticamente delgados.



### 2.1.3. Ancho y Forma de Líneas Espectrales

Las líneas espectrales se generan debido a alguna transición entre niveles de energía de un átomo o molécula. Sin embargo, una transición no emite en una longitud de onda o frecuencia única, sino que tiene cierto ensanchamiento debido a diferentes procesos que se presentan en el material.

Son varios los procesos que pueden contribuir al ancho finito de una línea espectral, como por ejemplo: ensanchamiento natural, ensanchamiento Doppler, ensanchamiento por presión ó por interacciones con partículas adyacentes y ensanchamiento instrumental. Y, en general, el ensanchamiento de la línea tendrá un perfil debido a la combinación de los diversos procesos involucrados.

La importancia de cualquier proceso de ensanchamiento de líneas regularmente es cuantificada por su *ancho total a la mitad de la altura máxima* (FWHM, por sus siglas en inglés), la cual está definida por  $|\nu_2 - \nu_1|$ , tal que  $I(\nu_2) = I(\nu_1) = I(\nu_0/2)$ , donde  $\nu_0$  es la frecuencia a la que se encuentra el máximo de intensidad. A continuación se definen cada uno de los diferentes tipos de ensanchamiento.

**Ensanchamiento Natural.** Este ensanchamiento es consecuencia del tiempo de vida finito del estado excitado debido a que se presenta un proceso de emisión espontánea. El Principio de Incertidumbre de Heisenberg en la forma  $\Delta E \Delta t \approx \hbar$  con  $\Delta E = \hbar \Delta \omega$  implica que existe una variedad de frecuencias atribuida al ancho finito de los niveles de energía discretos envueltos en la transición.

En ausencia de radiación externa la población del nivel m decrece de acuerdo con

$$-\frac{dN_m}{dt} = A_{mn} N_m, \quad (2.27)$$

$$\Rightarrow N_m(t) = N_m(0) \exp(-A_{mn} t)$$

donde  $A_{mn}$ : Probabilidad de transición del nivel m al n

La forma de línea puede derivarse a partir de una transformada de Fourier del dominio del tiempo al dominio de la frecuencia. En términos del pico de la intensidad de línea, el perfil de ésta, está dado por una función lorentziana, cuya forma corresponde a la Ec. (2.28):

$$I(\nu) = I_0 \frac{(A_{mn}/4\pi)^2}{(\nu - \nu_0)^2 + (A_{mn}/4\pi)^2} \quad (2.28)$$

donde  $|\nu_{1/2} - \nu_0| = \frac{A_{mn}}{4\pi} \Rightarrow FWHM \equiv \delta_{\nu_L} = \frac{A_{mn}}{2\pi}$ .

**Ensanchamiento Doppler.** El ensanchamiento Doppler se debe a un corrimiento aparente en la longitud de onda de la señal ocasionado por un movimiento de la fuente luminosa, en este caso, por el movimiento térmico de los átomos emisores. El observador ve una gama de corrimientos correspondiente a una gama de velocidades en la línea de observación y esto es equivalente a un ensanchamiento de la línea.

La forma de línea del ensanchamiento Doppler sigue la distribución de velocidades de los átomos y puede derivarse fácilmente para un gas que se encuentra en equilibrio termodinámico.

Cuando el emisor se aproxima al observador con una velocidad  $v_x$ , entonces ocurre que:

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} = \frac{\Delta\nu}{\nu_0} = \frac{v_x}{c}. \quad (2.29)$$

En equilibrio, a una temperatura  $T$ , la fracción de átomos con velocidades entre  $v_x$  y  $v_x + dv_x$  tiene la distribución de velocidades de Maxwell dada por:

$$\frac{dN(v_x)}{N} = \frac{1}{\sqrt{\pi}\alpha} \exp\left[-\frac{v_x^2}{\alpha^2}\right] dv_x, \quad (2.30)$$

donde  $\alpha = \left(\frac{2kT}{m_A}\right)^{1/2}$  : la velocidad más probable.

Sustituyendo la Ec. (2.29) en la Ec. (2.30) se tiene que para la fracción de átomos que emiten en el intervalo de frecuencias  $\nu$  y  $\nu + d\nu$ :

$$\frac{dN(\nu)}{N} = \frac{c}{\sqrt{\pi}\nu_0\alpha} \exp\left[-\left(\frac{c\Delta\nu}{\nu_0\alpha}\right)^2\right] d\nu, \quad (2.31)$$

donde  $\Delta\nu = \nu - \nu_0$ .

Como la intensidad a la frecuencia  $\nu$  es proporcional a  $dN(\nu)$ , implica que el perfil de la línea está dado por la función gaussiana:

$$g(\nu) = \frac{c}{\sqrt{\pi}v_0\alpha} \exp\left[-\left(\frac{c(\nu - \nu_0)}{v_0\alpha}\right)^2\right]. \quad (2.32)$$

Es más conveniente escribir esta función en términos del FWHM, donde los valores a la mitad del máximo,  $\nu_{1/2}$ , están definidos, empleando la Ec. (2.32), por:

$$\begin{aligned} \frac{c^2}{v_0^2\alpha^2}(\nu_{1/2} - \nu_0)^2 &= \ln 2 \\ \Rightarrow \delta\nu_D &= 2|\nu_{1/2} - \nu_0| = 2\sqrt{\ln 2} \frac{v_0\alpha}{c}. \end{aligned} \quad (2.33)$$

**Ensanchamiento instrumental.** El ensanchamiento instrumental aparece cuando la luz debe pasar por diversos componentes ópticos en los cuales sufre dispersiones, difracción, etc.

La magnitud del ancho de línea depende de los componentes del experimento y, generalmente, se determina empleando lámparas espectroscópicas a baja presión, cuyas líneas de emisión se suponen infinitamente delgadas, ya que sólo tienen un ensanchamiento natural prácticamente despreciable.

**Ensanchamiento por presión.** Una línea espectral se ensancha por la presión en el gas y por la presencia de partículas cargadas y neutras. Esta perturbación se debe a interacciones entre los átomos, iones o moléculas, emisores o absorbentes, y las otras partículas presentes en el plasma. El modelo más simple que se puede hacer de estas interacciones es aquel que considera que los trenes de onda radiados por los átomos son interrumpidos abruptamente por una colisión después de un tiempo promedio  $t_0$ . El número de átomos intactos, es decir que no son dispersados, después de un tiempo  $t$  se encuentra mediante la relación siguiente:<sup>1</sup>

$$N(t) = N(0) \exp\left(-\frac{t}{t_0}\right). \quad (2.34)$$

La Ecuación (2.34) es similar a la Ec. (2.27), por consiguiente, el perfil de la línea es lorentziano con un FWHM dado por  $\delta_{v_L} = \frac{1}{2\pi t_0}$ .

En el ensanchamiento por presión pueden existir tres tipos de interacciones en el interior del plasma:

- Interacción entre átomos idénticos pero en diferentes estados de excitación, de los cuáles uno se encuentra en el estado base. Esto produce un *ensanchamiento por Resonancia*.
- Interacción entre átomos neutros, la cual tiene que ver con potenciales interatómicos como son repulsión electrostática entre dos núcleos o dos electrones y la atracción electrón-núcleo. Esta interacción produce un *ensanchamiento de Van der Waals*.
- Interacción con partículas cargadas, las cuales son electrones libres presentes en el plasma que producen una perturbación en el potencial de los átomos y/o iones. La interacción entre un átomo y un campo eléctrico, producido por una partícula cargada, es descrita por el efecto Stark. Entonces el ensanchamiento producido por este tipo de interacciones recibe el nombre de *ensanchamiento Stark*.

Puede haber una combinación de diferentes procesos involucrados en el ensanchamiento de la línea espectral. Ésta se expresa matemáticamente a través de la convolución de los diferentes perfiles de los diversos ensanchamientos; entonces, en general, el perfil de una línea espectral es un perfil Voigt, el cual proviene de hacer la convolución de un perfil lorentziano con uno gaussiano.

### 2.1.3.1. Determinación de la Densidad Electrónica por Efecto Stark

La técnica espectroscópica más poderosa para determinar la densidad electrónica  $N_e$  proviene de la medición del ensanchamiento Stark de las líneas de emisión. Para este método las intensidades absolutas de los fotones no son requeridas, sino únicamente la forma y el ancho de la línea. Estos últimos se originan del campo Coulombiano de los iones y electrones situados dentro de una esfera de radio  $r \approx L_D$  medido a partir del “radiador” y si una partícula pasa a una distancia menor que  $L_D$  del “radiador”, ésta es dispersada, donde  $L_D$  es la longitud de Debye (medida en metros) definida como:<sup>6</sup>

$$L_D = \left[ \frac{\epsilon_0 T}{e^2 (N_e + \sum_{z,a} z^2 N_a^z)} \right]^{1/2}, \quad (2.35)$$

donde T es la temperatura electrónica en eV,  $N_e$  la densidad electrónica y  $N_a$  la densidad de especies iónicas.

Si se desprecian interacciones entre cargas vecinas, entonces se define el parámetro  $N_D$  como el número de partículas en el interior de una esfera de Debye, cuyo radio está dado por  $L_D$ , de la siguiente manera:

$$N_D = \frac{4}{3} \pi N_e L_D^3. \quad (2.36)$$

Entonces, el FWHM de una línea aislada puede ser calculado en la aproximación del impacto electrónico y corregido por el ensanchamiento iónico cuasi estático. Además de este ensanchamiento, existe un corrimiento del centro de la línea a partir de la posición que tendría en el límite en que la densidad de perturbaciones (electrones libres) fuera cero. Una buena aproximación (20-30%) del FWHM de la longitud de onda  $\Delta\lambda_{1/2}$  está dada por:

$$\Delta\lambda_{1/2} = 2W \left( \frac{N_e}{10^{16}} \right) + 3.5A \left( \frac{N_e}{10^{16}} \right)^{1/4} \left[ 1 - \frac{3}{4} N_D^{-1/3} \right] W \left( \frac{N_e}{10^{16}} \right). \quad (2.37)$$

En la Ecuación (2.37) el ancho se mide en angstroms ( $\text{\AA}$ ) y la densidad electrónica en  $\text{cm}^{-3}$ . El parámetro  $N_D$  representa el número de partículas en una esfera de Debye dado por la Ec. (2.36). Los coeficientes W y A son independientes de la densidad  $N_e$  y representan el parámetro de impacto electrónico y el parámetro de ensanchamiento por impacto iónico respectivamente. Estos dos parámetros están en función de la temperatura T, aunque su variación es muy lenta.

La Ecuación (2.37) se aplica para líneas de átomos neutros, para que sea aplicable a iones simples (átomos con un electrón menos), es necesario reemplazar el coeficiente  $\frac{3}{4}$  por 1.2.

## 2.2. INTERFEROMETRIA DE DOS COLORES

La Interferometría de Dos Colores nos permite conocer la densidad electrónica y de neutros presentes en la pluma de un plasma, haciendo pasar sobre ésta, dos haces de diagnóstico que tienen longitudes de onda diferentes. Esta técnica está basada en medir un corrimiento de las franjas de interferencia debido a un cambio en el índice de refracción del medio a analizar. Este corrimiento se produce porque uno de los brazos del interferómetro, el cual generalmente es un Interferómetro Mach-Zehnder, pasa por el medio que cambia su índice de refracción, modificando de esta forma su camino óptico y, por ende, las franjas de interferencia.

### 2.2.1 Elementos de la Teoría de Interferencia e Interferómetros<sup>9,10</sup>

Si la luz de una fuente es dividida por un aparato adecuado en dos haces, los cuáles son después superpuestos, la intensidad en la región de superposición se encuentra que varía de punto a punto. Esta variación va desde un máximo que excede la suma de las intensidades, hasta un mínimo que puede ser cero. Este fenómeno se llama interferencia.

Existen dos métodos generales para obtener haces a partir de una sola fuente:

- El haz es dividido al pasar a través de aberturas localizadas una junto a la otra. Este método es llamado "*División del frente de Onda*" y es útil sólo con fuentes suficientemente pequeñas.
- El haz es dividido por una o más superficies parcialmente reflejantes, en las cuales parte de la luz es reflejada y parte transmitida. Este método es llamado "*División de Amplitud*" y puede ser usado para fuentes extendidas.

Para que un patrón de interferencia sea observado, las dos fuentes no deben estar en fase entre sí; es decir, un patrón de interferencia se tiene si existe alguna diferencia de fase inicial entre las fuentes y ésta se mantiene constante. Tales fuentes se dice que son coherentes. En otras palabras, el intervalo promedio de tiempo durante el cuál la onda de luz oscila de forma predecible se designa como *coherencia temporal*,  $\Delta t_c$ , o tiempo de coherencia de la luz. La coherencia temporal está relacionada con la pureza espectral

$$\Delta t_c \approx \frac{1}{\Delta \nu}, \quad (2.38)$$

donde  $\Delta \nu$  es el ancho de línea natural.

La correspondiente extensión espacial sobre la cual la onda de luz oscila en una forma predecible se conoce como *longitud de coherencia*  $\Delta x_c$ :

$$\Delta x_c = c\Delta t_c. \quad (2.39)$$

Si la luz fuera idealmente monocromática, la onda sería una senoide perfecta con una longitud de coherencia infinita. De ahí que un láser, el cual es prácticamente monocromático, sea una muy buena fuente de luz para producir interferencia. La manera más común de producirla es hacer que una fuente sirva para producir dos fuentes secundarias coherentes.

En el caso de los Interferómetros de División de Amplitud, si las dos ondas separadas de alguna manera se juntan, entonces habría interferencia, dado que la coherencia original entre las dos ondas no había sido destruida. Ahora, si la longitud de caminos difiere por una distancia mayor a la longitud de coherencia, las porciones reunidas corresponderán a diferentes grupos de ondas. No existiría una única relación de fase entre ellas en ese caso, y el patrón de franjas sería inestable al punto ser inobservable.

Un caso particular de interferómetros de división de amplitud, el cual compete directamente a la realización de este trabajo, recibe el nombre de *Interferómetro de Mach-Zehnder* (Ver Fig. 2.1). Este interferómetro consiste de dos divisores de haz y dos espejos totalmente reflejantes. Las dos ondas dentro del sistema viajan por caminos diferentes. Si se interpone un objeto en uno de los caminos producirá una alteración en la diferencia de caminos ópticos, resultando en un cambio en el patrón de franjas. Una aplicación común de este sistema es para observar variaciones en el índice de refracción de alguna sustancia debido a algún evento específico, por ejemplo, un plasma de ablación.

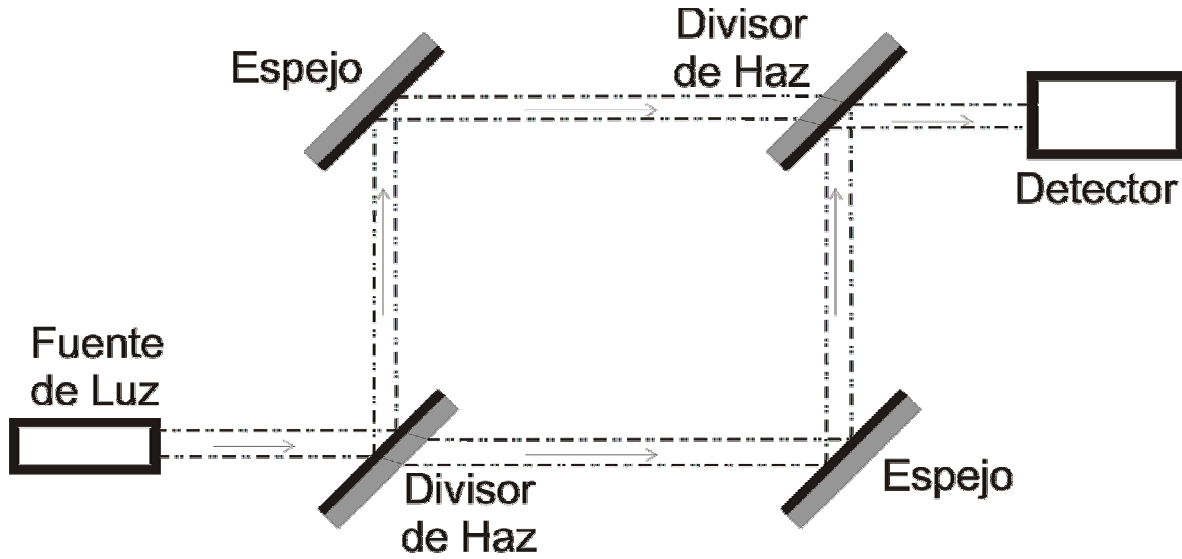


FIGURA 2.1. Interferómetro Mach-Zehnder.

### 2.2.2. Interferencia de Dos Ondas Monocromáticas<sup>9-10</sup>

Un punto básico de las ecuaciones de Maxwell para el campo electromagnético (EM) es la existencia de soluciones de onda viajera. Las ondas EM más simples y fundamentales son ondas planas.

En la ausencia de fuentes, las ecuaciones de Maxwell en el vacío son:

$$\nabla \cdot \vec{E} = 0, \quad (2.40)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \quad (2.41)$$

$$\nabla \times \vec{E} + \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0, \quad (2.42)$$

$$\nabla \times \vec{B} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = 0, \quad (2.43)$$

donde  $E$  y  $B$  representan el campo eléctrico y magnético respectivamente,  $\mu_0$  es la permeabilidad magnética,  $\varepsilon_0$  la permitividad eléctrica del vacío. Combinando las Ecs. (2.42, 2.43) y haciendo uso de Ecs. (2.40, 2.41) encontramos que cada componente de  $E$  y  $B$  satisface la ecuación de onda:

$$\nabla^2 u - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = 0, \quad (2.44)$$

donde  $c$  expresa la velocidad de propagación en el vacío y está dada por:



$$c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \epsilon_0}} . \quad (2.45)$$

En el caso de un medio material, la velocidad de propagación de la onda depende de la permeabilidad magnética  $\mu$  y permitividad eléctrica  $\epsilon$  del medio bajo la misma relación expresada en Ec. (2.45).

La Ec. (2.44) tiene soluciones de onda plana expresadas en la Ec. (2.46)

$$u = \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t) , \quad (2.46)$$

donde  $u$  expresa uno de los campos físicos  $E$  o  $B$  y la frecuencia  $\omega$  y la magnitud del vector de onda  $\vec{k}$  están relacionados por:

$$k = \frac{\omega}{v} = \sqrt{\mu\epsilon}\omega . \quad (2.47)$$

Si consideramos ondas planas propagándose en una sola dimensión, digamos  $z$ , entonces la solución a la Ec. (2.44) es:

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}, t) &= \vec{E}_0 \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] \\ \vec{B}(\vec{r}, t) &= \vec{B}_0 \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] \end{aligned} \quad (2.48)$$

donde los campos deben satisfacer las ecuaciones de Maxwell, por lo tanto, sustituyendo estas soluciones en las Ecs. (2.45- 2.43) se obtienen las siguientes condiciones para  $E$  y  $B$ :

$$\begin{aligned} \vec{E}_0 \cdot \vec{k} &= \vec{B}_0 \cdot \vec{k} = 0 \\ \vec{k} \times \vec{E}_0 &= \omega \vec{B}_0 \\ \vec{k} \times \vec{B}_0 &= -\omega \mu \epsilon \vec{E}_0 \end{aligned} \quad (2.49)$$

Es decir, la onda descrita en la Ec. (2.48) es una onda transversal propagándose en la dirección  $\vec{k}$  normal a  $E$  y  $B$  simultáneamente.

El flujo de energía transportado por una onda electromagnética está representado por el *Vector de Poynting*  $S$ :

$$\vec{S} = \frac{1}{\mu} \vec{E} \times \vec{B} . \quad (2.50)$$

Al hablar de la cantidad de luz que ilumina una superficie, se hace referencia a algo que se llama *irradiancia*  $I$ , la cual es la energía media por unidad de tiempo por unidad de área. Ésta se define como el promedio temporal de la magnitud del vector de Poynting para campos monocromáticos:

$$\langle \vec{S}(\vec{r}, t) \rangle_T \equiv I = \frac{1}{\mu} \text{Re} \langle \vec{E} \times \vec{B} \rangle_T \quad (2.51)$$

y, sustituyendo las relaciones de las Ecs. (2.49) en la Ec. (2.51) obtenemos:

$$I = \frac{1}{\mu\omega} \langle |E_0|^2 \rangle_T, \quad (2.52)$$

en donde el promedio temporal de una función calculado en un intervalo  $T$  está definido como:

$$\langle f(t) \rangle_T = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} f(t') dt'. \quad (2.53)$$

Supongamos ahora que dos ondas monocromáticas se superponen en algún punto  $P$ , entonces el campo eléctrico en ese punto es:

$$\begin{aligned} \vec{E} &= \vec{E}_1 + \vec{E}_2 \\ \Rightarrow E^2 &= \vec{E} \cdot \vec{E} = E_1^2 + E_2^2 + 2\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_2 \end{aligned} \quad (2.54)$$

De la Ec. (2.52), obtenemos la irradiancia total para la superposición de dos ondas monocromáticas:

$$I = I_1 + I_2 + I_{12}, \quad (2.55)$$

donde  $I_{12}$  se denomina *término de Interferencia*, el cual proviene del término  $2\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_2$  de la Ec. (2.54) y a partir de la parte real del campo eléctrico en la Ec. (2.48) se obtiene que:

$$I_{12} = 2\sqrt{I_1 I_2} \cos \Delta\phi \quad (2.56)$$

$\Delta\phi$  es la diferencia de fase resultante de una discrepancia en la longitud de camino óptico recorrido por cada una de las ondas que interfieren. Por lo tanto, la irradiancia total producida por una superposición de dos ondas electromagnéticas está dada por:

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos \Delta\phi. \quad (2.57)$$

La diferencia de fase está definida a partir del término de interferencia, [ver Ecs. (2.54, 2.56)]. Desarrollando los términos y haciendo el promedio temporal de cada uno de ellos se llega a:

$$\langle \vec{E}_1 \cdot \vec{E}_2 \rangle_T = \frac{1}{2} \vec{E}_{01} \cdot \vec{E}_{02} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_1 - \vec{k} \cdot \vec{r}_2). \quad (2.58)$$

La Ec. (2.58) indica que la diferencia de fase entre las ondas interferentes  $\Delta\phi$  está dado por:

$$\Delta\phi = \vec{k} \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2) = k\Lambda, \quad (2.59)$$

donde  $\Lambda$  es la diferencia de camino óptico que tienen las dos ondas interferentes.

### 2.2.3. Dispersión de una Onda Electromagnética y Refractividad Óptica<sup>9-11</sup>

Cuando una onda electromagnética incide sobre una partícula cargada, las componentes eléctrica y magnética de la onda ejercen una fuerza de Lorentz sobre la carga, poniéndola en movimiento. La partícula cargada es acelerada y de esta forma emitirá radiación, es decir, energía absorbida de la onda incidente por la partícula, es después reemitida. Tal proceso es llamado dispersión de la onda electromagnética por la partícula.

Como aproximación, es posible modelar un gas como osciladores armónicos clásicos, con uno o más electrones unidos al núcleo mediante resortes lineales. En particular, estamos interesados en la dependencia en frecuencia de la propagación de una onda electromagnética a través del medio. De las Ecs. (2.44, 2.45), la componente eléctrica de una onda electromagnética obedece la ecuación de onda

$$\nabla^2 \vec{E} - \varepsilon\mu \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0, \quad (2.60)$$

en la cual las propiedades del medio están representadas por las constantes  $\varepsilon$  y  $\mu$ . El coeficiente de la derivada temporal de la Ec. (2.60) es el inverso de la velocidad de propagación al cuadrado. Entonces, es posible definir una cantidad adimensional dada por la razón entre las velocidades de propagación de la onda electromagnética en el vacío y en la materia, esta cantidad es conocida como *índice de refracción* ( $\eta$ ):

$$\eta \equiv \frac{c}{v} = \sqrt{\frac{\epsilon\mu}{\epsilon_0\mu_0}}. \quad (2.61)$$

Si la permitividad eléctrica  $\epsilon$  es una función de la frecuencia  $\omega$ , entonces la velocidad de propagación  $v$  y el índice de refracción  $\eta$  dependen también de la frecuencia. Tal medio es conocido como *dispersivo*. Cuando el medio contiene mecanismos de disipación de energía,  $\epsilon$  y  $\eta$  serán cantidades complejas. La parte imaginaria de la permitividad eléctrica representa conductividad y la del índice de refracción representa amortiguación de la onda o absorción mientras se propaga por el medio.

Introducimos ahora un modelo clásico de Lorentz de un átomo o molécula. El  $n$ -ésimo electrón está ligado al núcleo masivo mediante resortes de constante  $k_n$ . El resorte tiene una longitud de equilibrio cero, es decir se excluyen moléculas con momento dipolar permanente. También suponemos que el electrón experimenta una fuerza amortiguada que depende de su velocidad. Entonces, la ecuación de movimiento del  $n$ -ésimo electrón, mientras pasa la onda electromagnética, es:

$$m\ddot{\vec{r}}_n + l_n\dot{\vec{r}}_n + k_n\vec{r}_n = -e\vec{E}, \quad (2.62)$$

donde se ha despreciado la parte magnética de la fuerza de Lorentz ya que la velocidad adquirida por el electrón es mucho menor que la velocidad de la luz.  $\omega_n \equiv \sqrt{k_n/m}$  es la *frecuencia característica* del electrón ligado elásticamente.  $\gamma_n \equiv l_n/m = \frac{e^2\omega_n^2}{6\pi\epsilon_0 mc^2}$  es el *coeficiente de amortiguación*. Este coeficiente está relacionado con la absorción de la onda incidente por parte del átomo o molécula, y el cambio en la energía del oscilador debido a la radiación dipolar que posteriormente tiene. Considerando que la onda incidente es una onda plana, entonces la Ec. (2.62) se escribe como:

$$\ddot{\vec{r}}_n + \gamma_n\dot{\vec{r}}_n + \omega_n^2\vec{r}_n = -\frac{e}{m}\vec{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (2.63)$$

cuya solución está dada por:

$$\vec{r}_n(t) = \frac{-(e/m)\vec{E}_0}{(\omega_n^2 - \omega^2) - i\gamma_n\omega} e^{-i\omega t}. \quad (2.64)$$

Así, el momento dipolar  $\vec{p}$  que resulta por el desplazamiento del n-ésimo electrón es:

$$\vec{p}_n = -e\vec{r}_n(t) = \frac{-(e^2/m)\vec{E}_0}{(\omega_n^2 - \omega^2) - i\gamma_n\omega} e^{-i\omega t}. \quad (2.65)$$

Ahora, si existen N electrones por unidad de volumen y una fracción de ellos  $f_\alpha$  tiene la frecuencia característica de resonancia  $\omega_\alpha$ , entonces el momento dipolar por unidad de volumen  $\vec{P}$  está dado por:

$$\vec{P} = \sum_\alpha N f_\alpha \vec{p}_\alpha = \vec{E} \sum_\alpha \frac{N f_\alpha (e^2/m)}{(\omega_\alpha^2 - \omega^2) - i\gamma_\alpha \omega} = N \alpha' \vec{E} \sum_\alpha f_\alpha, \quad (2.66)$$

donde  $\alpha'$  es la polarizabilidad del medio y el momento dipolar se ha definido como  $\vec{p} = \alpha' \vec{E}$ .

Por otro lado, la forma macroscópica de la Ley de Gauss (Ec. 2.41), en la presencia de un medio dieléctrico se escribe como:

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho_f, \quad (2.67)$$

donde  $\vec{D}$  es el *desplazamiento dieléctrico* definido como  $\vec{D} \equiv \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$  y  $\rho_f$  es la densidad de carga libre en el medio. Experimentalmente se encuentra que para una gran cantidad de materiales  $\vec{P}$  es linealmente proporcional a  $\vec{E}$ , es decir  $\vec{P} = \chi_e \vec{E} = (\varepsilon - \varepsilon_0) \vec{E}$  donde  $\chi_e$  es la *susceptibilidad eléctrica* del medio. Localmente nuestro plasma podría estar dentro de esta categoría, así el desplazamiento dieléctrico queda definido como:

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E}. \quad (2.68)$$

El factor de proporcionalidad entre  $\vec{D}$  y  $\vec{E}$  es llamado *constante dieléctrica* o *permitividad eléctrica* del medio  $\varepsilon$  (en el caso de que el medio sea homogéneo); en general este factor de proporcionalidad es un tensor.

Si sustituimos estas últimas relaciones en Ec. (2.66) obtenemos una relación para la permitividad eléctrica:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0 + \frac{Ne^2}{m} \sum_\alpha \frac{f_\alpha}{\omega_\alpha^2 - \omega^2 - i\gamma_\alpha \omega}. \quad (2.69)$$

Como se ha despreciado la parte magnética, entonces la permeabilidad magnética  $\mu$  vale 1; por lo tanto el índice de refracción, a partir de la Ec. (2.61), se puede expresar como  $\eta = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$ . Así, mediante la Ec. (2.69) obtenemos una expresión para el índice de refracción:

$$\eta^2(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \sum_{\alpha} \frac{f_{\alpha}}{\omega_{\alpha}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\alpha}\omega}. \quad (2.70)$$

La Ec. (2.70) es esencialmente el mismo resultado que aparece en el tratamiento cuántico, con la excepción de que algunos de los términos deben ser reinterpretados. Las cantidades  $\omega_{\alpha}$  serían las frecuencias a las cuales un átomo puede absorber o emitir energía radiante. Los términos  $f_{\alpha}$  son las *intensidades de absorción de los osciladores*, los cuales están relacionados con las probabilidades de transición del átomo o ión. Si  $\omega$  es igual a cualquiera de las frecuencias características, ocurre la absorción de la onda incidente por el medio y el índice de refracción es una cantidad imaginaria.

En el rango de longitudes de onda cubierto en la mayoría de los experimentos de espectroscopía de plasmas, el índice de refracción está casi siempre cercano a la unidad. Entonces la desviación del índice de refracción del plasma con respecto al del vacío es una función lineal de la contribución de las diferentes densidades de las especies presentes en el mismo.<sup>1</sup> Usando la aproximación:

$$\eta^2 - 1 = (\eta - 1)(\eta + 1) \approx 2(\eta - 1), \quad (2.71)$$

la Ec. (2.70) se puede escribir como:

$$\eta(\omega) - 1 \approx \frac{Ne^2}{2\epsilon_0 m} \sum_{\alpha} \frac{f_{\alpha}}{\omega_{\alpha}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\alpha}\omega}. \quad (2.72)$$

Por otro lado, si la longitud de onda incidente al medio tiene un valor alejado de alguna de las transiciones resonantes, es decir se cumple la relación  $\gamma_{\alpha} \ll |\omega_{\alpha} - \omega| \ll \omega_{\alpha}$ , el coeficiente de amortiguación  $\gamma$  puede ser despreciado. Además, como ya se dijo, se pueden calcular por separado la contribución de las diferentes componentes del plasma al índice de refracción. En el caso de los electrones libres  $\omega_{\alpha} = 0$  y  $f_{\alpha} = 1$ , entonces el índice de refracción de los electrones es:

$$(\eta - 1)_{electrones} \approx -\frac{r_0 \lambda^2}{2\pi} N_e = \alpha_e N_e, \quad (2.73)$$

donde  $\alpha_e$  es la polarizabilidad electrónica [ver Ec. (2.66)].

La contribución de la polarización iónica afecta considerablemente a  $\eta$  en las regiones de resonancia ya que lejos de ellas, la contribución al índice de refracción sería similar al mostrado en la Ec. (2.73), sustituyendo la masa del electrón por la masa del ión. Esto quiere decir que la contribución sería más pequeña por un factor que depende de la proporción entre la masa electrónica y la masa iónica, por lo tanto  $(\eta - 1)_{iones} \ll (\eta - 1)_{electrones}$ .

La otra contribución competitiva al índice de refracción proviene de los átomos en el estado base. Ésta puede estimarse de la Ec. (2.72), la cual se desarrolla como una serie de Taylor en términos de  $(\omega/\omega_\alpha)^2$  y transformando de frecuencias a longitudes de onda, se tiene que:

$$(\eta - 1)_{atomos} \approx \sum_{\alpha} \frac{r_0 f_{\alpha} \lambda_{\alpha}^2}{2\pi} \left[ 1 + \left( \frac{\lambda_{\alpha}}{\lambda} \right)^2 + \dots \right] N_n = \alpha_0 N_n, \quad (2.74)$$

donde  $\alpha_0$  es la polarizabilidad de neutros [ver Ec. (2.66)] y, tanto para Ec. (2.73) como para Ec. (2.74) se ha sustituido el radio clásico del electrón  $r_0$  en la Ec. (2.72). El radio clásico del electrón se define como:

$$r_0 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{mc^2}. \quad (2.75)$$

El índice de refracción debido a los átomos, Ec. (2.74), es casi siempre independiente de la longitud de onda de observación debido a que las longitudes de onda de resonancia se encuentran generalmente en la región ultravioleta del espectro electromagnético. Esto es, si  $\lambda$  se encuentra en la región visible, entonces el término

$\left( \frac{\lambda_{\alpha}}{\lambda} \right)^2 \ll 1$ , así como los términos de orden superior se pueden despreciar de la Ec. (2.74).

#### 2.2.4. Corrimiento de Fase de una Onda Electromagnética Interferente

Si por uno de los brazos de un interferómetro Mach-Zehnder se tiene un medio (en este caso un plasma) de longitud  $L$  que tiene un índice de refracción diferente al del aire  $\eta$ , que es donde está construido el interferómetro, entonces se observará un corrimiento de las franjas de interferencia. Este corrimiento proviene del hecho que la luz en uno de los brazos recorrerá un camino óptico adicional dado por:

$$\Lambda = L(\eta - 1). \quad (2.76)$$

El desfase entre las dos ondas interferentes es el producto del módulo de vector de onda con el camino óptico adicional recorrido [ver Ec. (2.59)], es decir:

$$\Delta\phi = k\Lambda = \frac{2\pi}{\lambda} L(\eta - 1). \quad (2.77)$$

En el caso de un plasma  $(\eta - 1)_T = (\eta - 1)_{elec} + (\eta - 1)_{atom}$  por lo tanto, haciendo uso de las Ecs. (2.73, 2.74) se encuentra el corrimiento de fase. Éste dependerá de la densidad electrónica y de neutros principalmente, dado que hemos despreciado la contribución iónica al índice de refracción. Entonces:

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} L(\alpha_0 N_n + \alpha_e N_e), \quad (2.78)$$

donde  $\alpha_0$  es la polarizabilidad de neutros y  $\alpha_e$  la polarizabilidad de los electrones libres [Ver Ecs. (2.66, 2.73, 2.74)]. La Ec. (2.78) muestra que, para conocer de manera simultánea la densidad de neutros,  $N_n$ , y la densidad electrónica,  $N_e$ , conociendo todos los demás parámetros a un mismo tiempo  $t$ , es necesario resolver dos de tales ecuaciones usando dos longitudes de onda diferentes. De ahí el nombre de Interferometría de Dos Colores para esta técnica de diagnóstico.

### 2.3. EVOLUCIÓN DINÁMICA DEL PLASMA

El cambio en la refractividad óptica de un medio, por ejemplo un plasma, es útil para conocer la ubicación espacial del mismo si éste es iluminado con una fuente de luz externa. Por otro lado, dado que el plasma está compuesto de átomos e iones excitados electrónicamente, hay emisión de luz. Esto permite obtener la evolución espacial de las partículas emisoras si se es capaz de coleccionar esa luz.



### 2.3.1. Fotografía de Sombras<sup>1,14</sup>

Esta técnica permite caracterizar al plasma iluminándolo con alguna otra fuente de luz y, empleando el hecho de que el plasma experimenta un cambio en el índice de refracción con respecto al índice de refracción del aire, es posible adquirir una imagen.

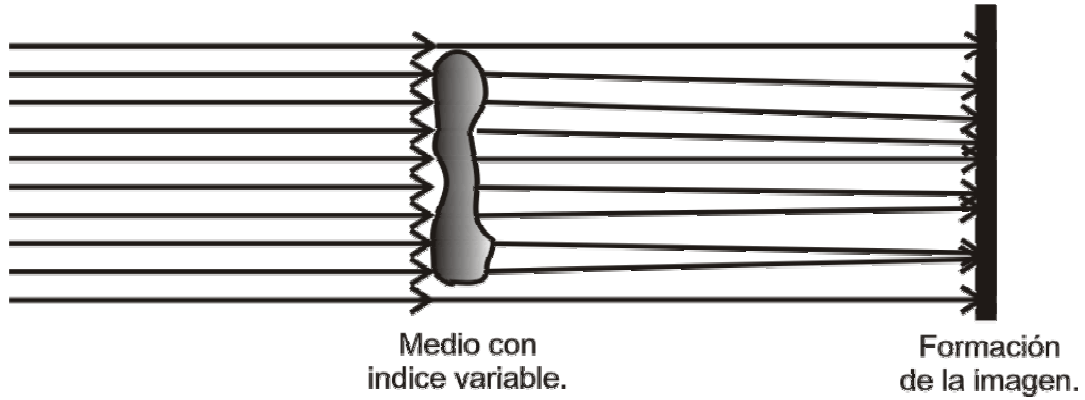
La refractividad de un gas depende de la composición del mismo, su temperatura, su densidad y la longitud de onda de iluminación. Las medidas de índice de refracción en cualquier medio usualmente se basan en alguna forma de interferometría (Ver sección 2.2). Un interferómetro es cualquier arreglo en el cual dos o más ondas producen interferencia por la adición coherente de campos eléctricos. La intensidad que se observa depende si los campos se interfieren constructiva o destructivamente. Desde el punto de vista de la óptica geométrica, lo que nos interesa es el desvío o la refracción de los “rayos” de luz.

La técnica de fotografía de sombras es derivada de la interferometría convencional. Una fotografía de sombras no es una imagen óptica enfocada y el nivel de iluminación responde a la segunda derivada espacial o Laplaciano del índice de refracción del medio, es decir, muestra el desplazamiento de los rayos resultante de la deflexión.

El principio bajo el cual funciona la técnica de fotografía de sombras se muestra en la Fig. 2.2. Las variaciones de intensidad en la imagen ocurren porque los rayos son desviados un ángulo  $\theta$ , el cual varía a través de la región en donde se expande el plasma.

El efecto va a suscitar que la energía electromagnética que debió haber caído debajo del punto  $y$  se mueva al punto  $y' = y + L\theta$ . donde  $L$  es la longitud del medio inhomogéneo o plasma. El mismo efecto ocurre en la dirección ortogonal denotada por la coordenada  $x$ . Por lo tanto, de la Ec. (2.75), la incidencia del rayo en la posición  $(x, y)$ , se desvía a una posición  $(x', y')$  al incidir en el plano detector:

$$(x', y') = \left( x + L \frac{L}{\eta} \frac{\partial \eta}{\partial x}, y + L \frac{L}{\eta} \frac{\partial \eta}{\partial y} \right). \quad (2.79)$$



**FIGURA 2.2.** La imagen de fotografía por sombras del plasma es consecuencia de la desviación del haz láser expandido.

Si el rayo incidente posee intensidad uniforme  $I_i$ , entonces la intensidad detectada  $I_d$  estará dada por:

$$I_d dx' dy' = I_i dx dy. \quad (2.80)$$

Así de las Ecs. (2.79, 2.80) obtenemos la razón de la intensidad incidente y detectada:

$$\frac{I_i}{I_d} = 1 + \frac{L^2}{\eta} \left[ \frac{\partial^2 \eta}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \eta}{\partial y^2} \right], \quad (2.81)$$

entonces, la variación de la intensidad, dada por  $\Delta I = I_i - I_d$  es:

$$\frac{\Delta I}{I_d} = \frac{L^2}{\eta} \left[ \frac{\partial^2 \eta}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \eta}{\partial y^2} \right]. \quad (2.82)$$

Por lo tanto, el cambio en la intensidad de la luz incidente es proporcional a la segunda derivada del índice de refracción del medio por el que atraviesa la luz.

Ahora bien, si se define la *frecuencia electrónica del plasma* ( $\omega_p$ ) como:

$$\omega_p = \left( \frac{N_e e^2}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2}, \quad (2.83)$$

donde,  $N_e$ : Densidad electrónica,  $e$ : Carga eléctrica del electrón,  $m_e$ : Masa del electrón; entonces de la Ec. (2.70), el índice de refracción del plasma se puede aproximar por:

$$\eta^2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \quad (2.84)$$

en donde se han despreciado las frecuencias características de emisión de los electrones ligados ( $\omega_a$ ), y la absorción de la onda incidente en el plasma.

La Ecuación (2.84) muestra que, para tener un índice de refracción del plasma real, se debe cumplir que la frecuencia de la onda incidente sea mayor que la frecuencia del plasma, dicho de otro modo,

$$\lambda < \lambda_{crítica} \quad (2.85)$$

donde  $\lambda_{crítica} = \frac{2\pi \cdot c}{\omega_p}$ .

Entonces, para que la técnica de Fotografía de Sombras funcione, es decir, que la longitud de onda de iluminación no sea absorbida por el plasma, sino únicamente reflejada, se debe cumplir la Ec. (2.85) para dicha  $\lambda$ .

**REFERENCIAS**

1. H.R. Griem. Plasma spectroscopy, (Mc Graw Hill, USA, 1964)
2. A. Thorne, U. Litzén, S. Johansson. Spectrophysics. (Springer- Verlag, Germany, 1999)
3. H.R. Griem. Spectral Line Broadening by Plasmas. (Academic Press, USA, (1974)
4. H.R, Griem. Principles of Plasma Spectroscopy. (Cambridge University Press, UK, 1997)
5. R.G. Root. Laser Induced Plasmas and Applications. Editado por L.J. Radziemsky, D.A. Cramers. (Marcell Dekker, USA, 1989)
6. G. Bekefi. Principles of Laser Plasmas. (John Wiley and Sons, USA, 1976)
7. R.W.P. Mc Whirter. Plasma Diagnostic Techniques. Editado por R.H. Hudleston, S.L. Leonard. (Academic Press, USA, 1965)
8. B.Y. Man. Appl. Phys. B. **67**, 241- 245. (1998)
9. M. Born, E. Wolf. Principles of Optics, 6<sup>th</sup> edition (Pergamon Press, UK, 1980)
10. E. Hecht. Óptica, 3<sup>a</sup> edición, trad. R. Dal Col (Addison Wesley Iberoamericana, Madrid, 2000)
11. J.D. Jackson. Classical Electrodynamics, 2<sup>nd</sup> edition (John Wiley and Sons, USA, 1975)
12. M.A. Heald, J.B. Marion. Classical Electromagnetic Radiation, 3<sup>rd</sup> edition (Saunders College Publishing, USA, 1995)
13. G.S. Settles. Schlieren and Shadowgraph Techniques (Springer- Verlag, Germany, 2001)
14. I.H. Hutchinson. Principles of plasma diagnostics, (Cambridge University Press. USA. 1987).

## **CAPÍTULO 3**

### **TÉCNICAS EXPERIMENTALES**

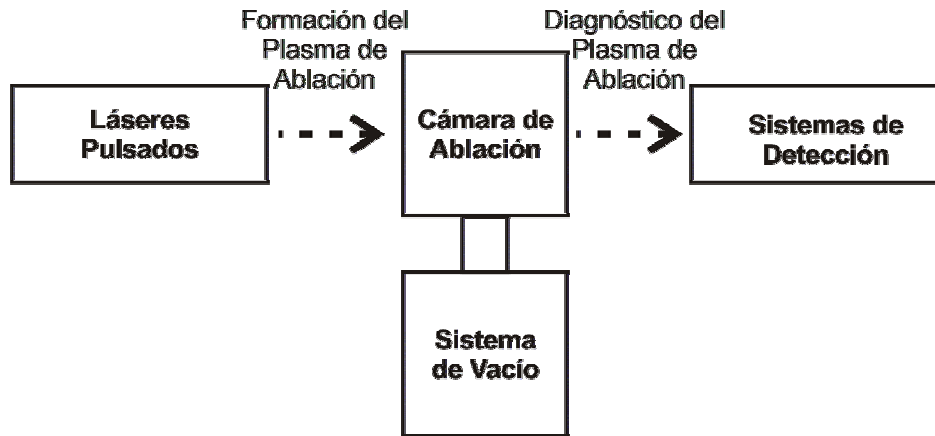
En el estudio de plasmas, para determinar parámetros internos, es conveniente utilizar métodos de diagnóstico que no perturben el sistema. Para esto se emplean técnicas que analizan la luz del mismo, y que se valen del cambio de índice de refracción en el plasma para estudiar sus propiedades. Los fundamentos teóricos de las diversas técnicas de diagnóstico empleadas en este trabajo se han descrito en el capítulo anterior.

En este capítulo, primero se hará una descripción general de este experimento, posteriormente, se detallará el equipo empleado y, finalmente, se explicará el desarrollo experimental para cada una de las técnicas de diagnóstico que componen este trabajo de tesis.

#### **3.1. DIAGNÓSTICO DE PLASMAS DE ABLACIÓN**

Como se mencionó en el Capítulo 1, para generar un plasma de ablación con láser y usar éste para el crecimiento de películas delgadas, se requiere que el blanco y, por consiguiente, la pluma, se encuentren en una cámara de vacío, de tal forma que se pueda tener una presión controlada. Asimismo, si se quiere estudiar las propiedades físicas del plasma, se necesitan láseres de diagnóstico y sistemas de detección.

Los plasmas de ablación de este trabajo fueron generados en la configuración de uno y doble pulso láser, variando el tiempo de retraso entre pulsos. Para estudiarlos, se emplearon tres técnicas de diagnóstico diferentes y complementarias entre sí: Interferometría de Dos Colores, Espectroscopía Óptica de Emisión y Fotografía Rápida. Esto fue con el fin de entender los procesos físicos producidos durante la interacción de dos plasmas de ablación de grafito perpendiculares. La Fig. 3.1 muestra un esquema general de los pasos a seguir para formar un plasma de ablación y hacer un diagnóstico del mismo.



**FIGURA 3.1.** Esquema general para la formación y diagnóstico de plasmas de ablación.

Los experimentos se realizaron dentro de una cámara de ablación. Esta cámara se encuentra conectada a un sistema de vacío constituido por una bomba mecánica y una bomba difusora, la presión con la que se trabajó fue de  $5 \times 10^{-6}$  Torr. El vacío se midió con un medidor tipo Pirani y un cátodo frío conectados a la cámara de ablación. Dentro de la cámara se encuentran los blancos de grafito rotatorios situados perpendicularmente entre sí. Para la producción de los plasmas se utilizaron dos fuentes de energía pulsadas: un láser de excímero KrF emitiendo a 248 nm con un ancho de pulso de 30 ns y un láser de Nd: YAG emitiendo en 1064 nm y 7 ns de ancho de pulso, ambos operando a 1 Hz, y enfocados sobre los blancos de grafito. La sincronía entre láseres se realizó mediante dos generadores de pulsos con retraso variable. De esta forma, podemos controlar de manera externa el retraso temporal entre los láseres, permitiendo que el Nd: YAG sea disparado antes que el KrF (Ver Sección 3.3.1). En este experimento se estudió el efecto que produce el plasma inducido por el láser de Nd: YAG sobre el plasma generado por el láser de KrF.

### 3.2. DESCRIPCIÓN DEL EQUIPO

Los diversos experimentos realizados hacen uso de láseres pulsados de alta potencia, láseres de diagnóstico, sistemas de detección y un sistema de vacío. A continuación se hablará brevemente de cada uno de ellos.

### 3.2.1. Láseres Pulsados

Para generar los plasmas de ablación se emplearon dos láseres pulsados de alta potencia sincronizados entre sí, de tal forma que el disparo de uno de ellos se puede retrasar con respecto al otro. Esto es con el fin de estudiar las interacciones de los dos plasmas de ablación bajo diferentes condiciones de retraso entre pulsos.

Uno de los láseres empleados tiene como medio activo es una barra de neodimio dopada de granate de aluminio e itrio ( $Y_3Al_5O_{12}$ ) -Nd: YAG-. Es un láser pulsado (*Continuum, Surelite I*), que emite su línea fundamental en 1064 nm, con posibilidad de duplicar y triplicar la frecuencia fundamental de la longitud de onda que emite, es decir, puede emitir una longitud de onda de 532 y 355 nm respectivamente. La duración del pulso es de 7 ns y se puede trabajar con diferentes frecuencias desde 1 hasta 10 Hz, teniendo además la posibilidad de variar la frecuencia utilizando un controlador externo. La energía del láser, puede cambiar, variando el voltaje de la lámpara desde 1 hasta 300 mJ emitiendo en el infrarrojo. El láser posee un modo de operación de acceso directo al disparo (*Direct Access Triggering, DAT*) el cual es utilizado cuando el experimento requiere que el disparo del láser sea sincronizado con otros dispositivos. En este caso, fue empleado para sincronizar éste con otro láser pulsado, también empleado para generar un plasma de ablación

El láser posee una cabeza de salida diseñada para un ancho de haz de 43 mm. La cabeza es bombeada por una lámpara de descarga de gas Xenón con una presión interna entre 1 y 3 atmósferas. El sistema de descarga de la lámpara tiene una duración de 200µs. Para producir pulsos cortos se utiliza el método de Q-switch o conmutación de la ganancia. Éste opera por medio de interacciones con la luz dentro de la cavidad del láser. Este sistema permite la acumulación de estados excitados en la cavidad resonante antes de disparar, permitiendo obtener potencias de salida mayores y pulsos muy cortos. Este *switch* o interruptor puede ser un elemento electro-óptico llamado *celda de Pockels*, que es un obturador electrónico de alta velocidad. Éste permanece “cerrado” mientras la lámpara excita el medio activo, y cuando se alcanza la mayor inversión de población, se abre, entregando un pulso de nanosegundos de duración, y alta potencia de salida.

Para generar el plasma de ablación de este trabajo, el láser emitió a una longitud de onda de 1064 nm con una frecuencia de 1 Hz y una energía de salida de 226 mJ. Al

enfocar el pulso láser en el blanco de grafito, éste podía alcanzar fluencias del orden de  $45 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ , es decir densidades de potencia del orden de  $6.5 \text{ GW}\cdot\text{cm}^{-2}$ .

El otro láser pulsado de alta potencia empleado en este trabajo es un láser de excímero. Este tipo de láseres toma su nombre debido a que emplea excímeros (molécula diatómica que sólo puede existir en niveles electrónicos excitados) durante la operación de éstos. Los excímeros más importantes son gases de sales de halógeno, como  $\text{F}_2$ ,  $\text{ArF}$ ,  $\text{KrF}$ ,  $\text{XeCl}$ , y  $\text{XeF}$ , con los que se operan láseres que emiten en el UV en distintas líneas espectrales entre 157 y 351 nm. En este tipo de láseres la fuente excitación es una descarga de alto voltaje (23-26 kV), entre dos electrodos que transfiere la energía al gas de excímero. Para obtener una descarga controlada, el gas del láser debe ser preionizado, es decir, debe existir una densidad suficientemente alta de moléculas libres cargadas entre los electrodos. Los procesos de preionización y la descarga principal deben estar perfectamente sincronizados. La descarga de alto voltaje dura aproximadamente 50 ns produciendo la inversión de población dentro de la cavidad del láser. Del mismo modo la descarga principal, antes mencionada, activa el *thyatron* el cual es un tubo que consta de una diferencia de potencial que actúa como un interruptor electrónico para la emisión del láser.

En el presente trabajo se utilizó un láser de excímero (*Lambda Physik, COMPex 102*) con una mezcla gaseosa de  $\text{KrF}$  como medio activo emitiendo a 248 nm. La energía máxima de salida es de 350 mJ, la frecuencia máxima es de 20 Hz y la duración del pulso es de 30 ns.

Para generar el plasma de ablación de grafito, se utilizó una frecuencia de disparo de 1 Hz y una energía de salida de 230 mJ. Al enfocar el pulso láser en el blanco de grafito, se alcanzaron fluencias del orden de  $122 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ , es decir densidades de potencia del orden de  $4 \text{ GW}\cdot\text{cm}^{-2}$ .

Los valores de la fluencia de ambos láseres podían variar hasta un 10% de acuerdo a las posibles variaciones en las condiciones de enfoque.



### 3.2.2. Láseres de Diagnóstico

Estos láseres emiten en el visible de manera continua y a baja potencia, de tal forma que no perturban al sistema a estudiar. Se emplearon en el diagnóstico del plasma de ablación mediante Interferometría de Dos Colores.

Uno de los láseres empleados tiene como medio activo gas ión- argón (Ar). Es un láser continuo (*LaserPhysics, Reliant 150M*), con la característica que emite en multilínea, es decir emite en cinco longitudes de onda diferentes correspondientes al mismo número de transiciones del gas dentro de la cavidad del láser. Las longitudes de onda de emisión son: 457.93, 476.49, 487.99, 501.00 y 514.43 nm, que en conjunto tienen una potencia máxima de salida de 150 mW.

El otro láser empleado para diagnosticar el plasma de ablación fue un láser He-Ne, (*JDS Uniphase, 1125 P*), que emite a una longitud de onda de 632.8 nm con una potencia de 10 mW.

### 3.2.3. Sistemas de Detección

Los equipos o sistemas de detección nos permiten obtener la información emanada del experimento. Estos sistemas procesan directamente la información que proviene de la luz, ya sea del plasma o de los láseres de diagnóstico.

#### 3.2.3.1. Espectrógrafo

Este dispositivo se utiliza para resolver las componentes de la luz según su longitud de onda. Existen diversos tipos de monocromadores capaces de resolver la descomposición espectral de una fuente luminosa. En este trabajo se utilizó un monocromador de rejilla (*Acton Research, SpectraPro 500i*). Éste tiene una distancia de camino óptico de 0.5 m y permite seleccionar entre tres rejillas de difracción distintas: 150, 1200 y 2400 líneas-mm<sup>-1</sup> que se encuentran en configuración Czerny-Turner, las cuales ofrecen diversos poderes resolutivos.

### 3.2.3.2. Cámara ICCD

La cámara CCD intensificada permite la obtención de imágenes y espectros en condiciones de luz muy tenue, es decir, es capaz de detectar un fotoelectrón (la eficiencia cuántica máxima del sistema es de  $\sim 0.4$ ). Si se quieren registrar exposiciones en tiempos muy cortos, la cantidad de luz que llega a la cámara es muy poca, por lo que se necesita aumentar la cantidad de fotones, de ahí el nombre de ICCD (*Intensified Charged Coupled Device*). En este trabajo se empleó una ICCD (*Princeton Instruments, PI-MAX: 1024UV*), la cual captura imágenes de  $1024 \times 1024$  píxeles, con un tamaño de  $13 \mu\text{m}$  por píxel. Su funcionamiento se explica a continuación.

Un fotón incide en el fotocátodo y se genera un fotoelectrón. Este fotoelectrón es acelerado hacia la superficie de una placa microcanal y es multiplicado por colisiones en las paredes de éste. Al salir, éstos golpean una placa de fósforo. El fósforo convierte a los electrones en luz visible, que es capturada por un arreglo de fibras ópticas acopladas a un detector de estado sólido (CCD). Esta cámara puede tomar lecturas en ventanas de hasta 2 ns, con muy bajo ruido, ya que el fotocátodo se encuentra en un dedo frío ( $\approx -20^\circ\text{C}$ ), que además está en una atmósfera de aire seco para evitar condensación. Esto elimina en gran medida el ruido producido por excitaciones térmicas.

La cámara ICCD permite la obtención de imágenes y espectros con un alto grado de amplificación y resolución, y más importante aún, la posibilidad de resolverlos temporalmente hasta con 2 ns de precisión mediante un generador de pulsos con retraso variable interno. Esta cámara permite el análisis temporal de la evolución espacial del plasma aplicando la técnica de fotografía rápida, si ésta se acopla al monocromador, permite capturar el espectro de emisión del plasma de ablación. Ahora, la rejilla de difracción del monocromador empleada determinará el rango espectral que se puede observar. Para la rejilla de  $150 \text{ líneas}\cdot\text{mm}^{-1}$  se registra un espectro de 160 nm, con la de  $1200 \text{ líneas}\cdot\text{mm}^{-1}$  uno de 20 nm y con una rejilla de  $2400 \text{ líneas}\cdot\text{mm}^{-1}$ , el rango espectral es de sólo 10 nm, pero con una mejor resolución.

Esta cámara se conecta a la PC y se controla con el programa Winspec32<sup>R</sup>, el cual también hace lo propio con el monocromador, permitiendo seleccionar la rejilla de difracción adecuada. Este programa permite modificar los diversos modos de operación de la cámara, el retraso entre los pulsos láser y el disparo de la cámara, seleccionar el

tiempo entre muestreos, el tiempo de exposición, la ganancia de la señal, y la posibilidad de ver el espectro en diversas interfaces gráficas.

### 3.2.3.3. Tubo Fotomultiplicador

El tubo fotomultiplicador es un detector extremadamente sensible a la luz ultravioleta, visible e infrarroja cercana. Estos detectores multiplican la señal producida por la luz incidente, de la cual es posible detectar hasta unos cuantos fotones.

Los fotomultiplicadores se construyen con un tubo de vidrio al vacío que alberga un dínodo y un ánodo. Los fotones incidentes golpean el fotocátodo y se producen fotoelectrones. Estos electrones son dirigidos por el electrodo de enfoque a través del multiplicador de electrones, donde los electrones son multiplicados por el proceso de emisión secundaria. El multiplicador de electrones consiste de cierto número de electrodos, llamados dínodos, en donde cada dínodo se encuentra a una diferencia de potencial positiva mayor que el anterior. Así, los electrones dejan el fotocátodo con la energía del fotón incidente menos la función de trabajo. Mientras se mueven hacia el primer dínodo, son acelerados por el campo eléctrico y llegan con una energía mucho mayor. Al golpear el primer dínodo, más electrones de baja energía son emitidos y éstos, son acelerados hacia el segundo dínodo. La geometría en la que están dispuestos los dínodos permite un efecto de cascada, de tal forma que el número de electrones se incrementa en cada etapa. Finalmente, el ánodo es alcanzado y la acumulación de carga resulta en una diferencia de potencial que entrega un pulso e indica la detección del fotón por el fotocátodo. La amplificación puede ser hasta de  $10^8$  veces, lo cual significa que pulsos mensurables se pueden obtener de un simple fotón.

La función del tubo fotomultiplicador (*Hamamatsu, 1P28*) en el experimento fue detectar la variación en intensidad de la luz del haz láser de diagnóstico debido al corrimiento de franjas de interferencia en el experimento de Interferometría de Dos Colores. Para esto, el fotomultiplicador, que estaba acoplado al monocromador, se conectó a un osciloscopio para que éste mostrara gráficamente la variación de la luz.

#### 3.2.3.4. Osciloscopio

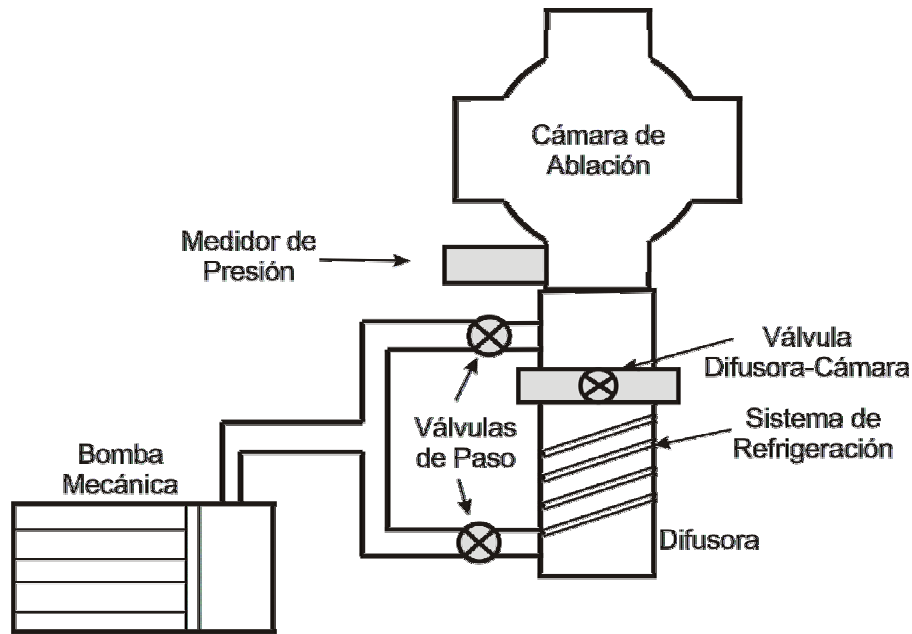
El osciloscopio tiene la función de mostrar gráficamente la variación de la intensidad de la luz medida por el fotomultiplicador. También es una herramienta esencial para hacer la sincronización de los láseres pulsados con la ayuda de fotodiodos acoplados a éste. El osciloscopio empleado (*Tektronix, 520 D*) tiene un ancho de banda de 500 MHz.

Un osciloscopio es un instrumento que crea una gráfica en dos dimensiones de una o más diferencias de potencial eléctrico y la muestra en una pantalla. El eje horizontal de la gráfica representa al tiempo, lo cual hace útil al aparato para mostrar señales eléctricas que varían en el tiempo; el eje vertical muestra la diferencia de potencial de la señal.

#### 3.2.4. Sistema de Vacío

Se utilizó una cámara de ablación de acero inoxidable con 6 entradas de tapas intercambiables. Estas tapas permiten conectar diversos dispositivos, medidores y ventanas, según las necesidades del usuario. La entrada inferior se acopló a un sistema de vacío constituido por una bomba mecánica (*Alcatel, Pascal 2005 SD*) y una bomba difusora para evacuar. En la Fig. 3.2 se muestra el esquema del sistema de vacío.

La bomba mecánica de vacío, también llamada bomba rotatoria funciona bajo el principio mecánico de un rotor, el cual funciona con un motor eléctrico. Se remueve gas aspirándolo y eyectándolo hacia el exterior. Con esta bomba se baja la presión de la cámara, desde la presión atmosférica, hasta  $10^{-3}$  Torr. Se usa aceite para enfriar la bomba, lubricar los rotores y proveer sellado a la máquina. Para bajar aún más la presión de la cámara, se emplea una bomba difusora, la cual evapora un fluido (aceite) que asciende y forma un chorro supersónico con velocidades superiores a 1200 Km/h. El vapor de aceite atrapa las partículas residuales de gas y, en las paredes de la bomba, el aceite se condensa mediante un sistema de refrigeración que emplea circulación de agua. De esta forma las partículas de aire residual escurren hasta el fondo de la bomba, para su posterior eyección del sistema. Este tipo de bombas funcionan en un intervalo de presiones de  $10^{-2}$  hasta  $10^{-6}$  Torr.



**FIGURA 3.2.** Representación esquemática del sistema de vacío.

Durante los experimentos se trabajó nominalmente al máximo de vacío entregado por el sistema a tiempos cortos ( $5 \times 10^{-6}$  Torr), medido con un sensor doble tipo Pirani y cátodo frío (*Balzers, PKR 250 Full Range*).

#### 3.2.4.1. Medidores de Presión

El medidor de presión empleado utiliza un cátodo frío y un Pirani con un intervalo de presión de  $5 \times 10^{-9}$  a 1000 Torr. El Pirani es un aparato que mide bajo vacío, utilizando la conductividad térmica de un gas para medir su presión. Consiste en un filamento calentado eléctricamente, cuya resistencia será proporcional a su temperatura. A presión atmosférica, las moléculas de un gas chocan con el filamento, removiendo parte de su energía térmica. Al bajar la presión, disminuye el número de moléculas de gas, reduciendo los choques con el filamento, aumentando así su temperatura. Al calentarse aumenta su resistencia eléctrica, la cual es medida con un circuito simple calibrado con respecto a algún gas. Con este medidor se pueden medir intervalos de presión desde presión atmosférica hasta alrededor de  $10^{-3}$  Torr.

El transductor de cátodo frío se basa en el principio de la medida de una corriente iónica producida por una descarga de alta tensión. Los electrones desprendidos del

cátodo toman un movimiento en espiral al irse moviendo a través de un campo magnético en su camino hacia el ánodo. Este movimiento da lugar a que el camino libre medio entre electrones sea mayor que la distancia entre electrodos. Por consiguiente, aumenta la posibilidad de colisiones con las moléculas del gas presente lo que da lugar a una mayor corriente iónica y de este modo la descarga catódica se mantiene a una presión más baja. El intervalo de presiones en el que puede emplearse este medidor abarca de  $10^{-2}$  a  $10^{-7}$  Torr.

### 3.3. DESARROLLO EXPERIMENTAL

El diagnóstico de los plasmas de ablación de grafito inducidos sobre dos blancos perpendiculares, estuvo orientado a entender los procesos físicos producidos durante la interacción de los dos plasmas de ablación. Para esto, se investigaron algunas propiedades físicas del plasma, tales como: densidad electrónica y de neutros mediante Interferometría de Dos Colores, la temperatura y la densidad electrónica mediante Espectroscopía Óptica de Emisión, y un estudio de la dinámica del plasma, mediante Fotografía Rápida. A continuación, se explicará cada uno de los experimentos en detalle.

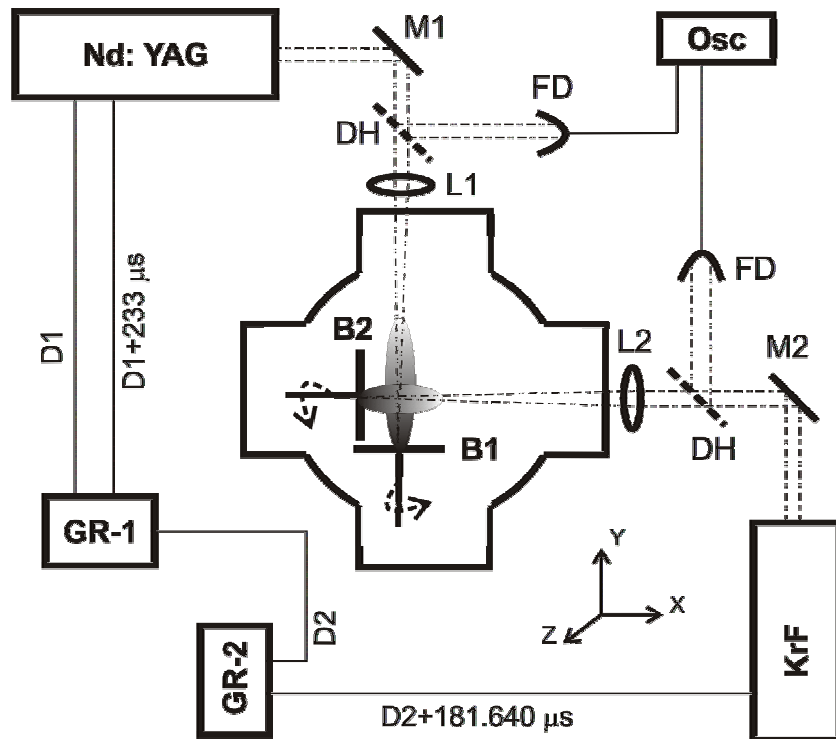
#### 3.3.1. Generación de los Plasmas de Ablación y Sincronía entre Láseres

Los plasmas de ablación se generan sobre dos blancos de grafito dispuestos perpendicularmente. Para garantizar que los pulsos láser no incidan en zonas ya ablacionadas de los blancos, éstos se hacen rotar mediante motores dispuestos en el interior de la cámara de ablación, la cual se encuentra a una presión de  $5 \times 10^{-6}$  Torr.

El arreglo experimental para sincronizar los láseres se muestra esquemáticamente en la Fig. 3.3. En esta configuración, se utilizan dos láseres pulsados sincronizados. El primero, es un Nd: YAG emitiendo a 1064 nm y el segundo, es un láser de excímero KrF operado a 248 nm. Ambos láseres fueron enfocados con lentes plano-convexas de 30 cm de distancia focal (L1: *Newport, KPX112* y L2: *CVI, PLCX-50.8-154.5-UV-248-355*). Los espejos para dirigir el haz hacia las lentes son para alta energía y reflejan la radiación infrarroja y ultravioleta, M1 y M2 respectivamente en Fig. 3.3 (M1: *CVI, Y1-1025-45-S* y M2: *CVI, KRF-2037-45-UNP*).

La distancia entre focos se varió entre 3 y 10 mm, a fin de estudiar, en la configuración de doble pulso, la afectación del segundo plasma con respecto a la distancia entre focos. Se encontró que los cambios más notables ocurren para el intervalo desde 3 hasta 4.5 mm, por lo que, en los experimentos subsecuentes, éstas fueron las distancias entre los puntos de enfoque de los pulsos láser. La distancia entre focos se mide haciendo incidir los láseres sobre papel fotográfico, el cual presenta un daño debido a la luz incidente.

Para sincronizar los pulsos láser se emplean dos Generadores de Pulsos con Retraso Variable (*Stanford, DG- 535*), los cuales, entre otras cosas, son capaces de generar pulsos eléctricos cuadrados (TTL). Estos pulsos le indican a un sistema electrónico, en particular los sistemas de disparo de los láseres los cuales se encuentran en modo de disparo externo, cuándo y cuánto tiempo deben accionarse. El Generador *GR-1* controla exclusivamente el disparo del láser de Nd: YAG, enviando primero un pulso, llamado *D1*, para encender la lámpara de Xe que excita el medio activo; mientras que, la señal indicada con  $D1 + 233 \mu s$  abre el Q-Switch del láser  $233 \mu s$  después de encender las lámparas de excitación.



**FIGURA 3.3.** Esquema del arreglo experimental empleado para generar los plasmas de ablación y sincronizar los láseres pulsados. M: Espejo, L: Lente, DH: Divisor de Haz, FD: Fotodiodo, B: Blanco, GR: Generador de Pulsos con Retraso Variable, Osc: Osciloscopio.

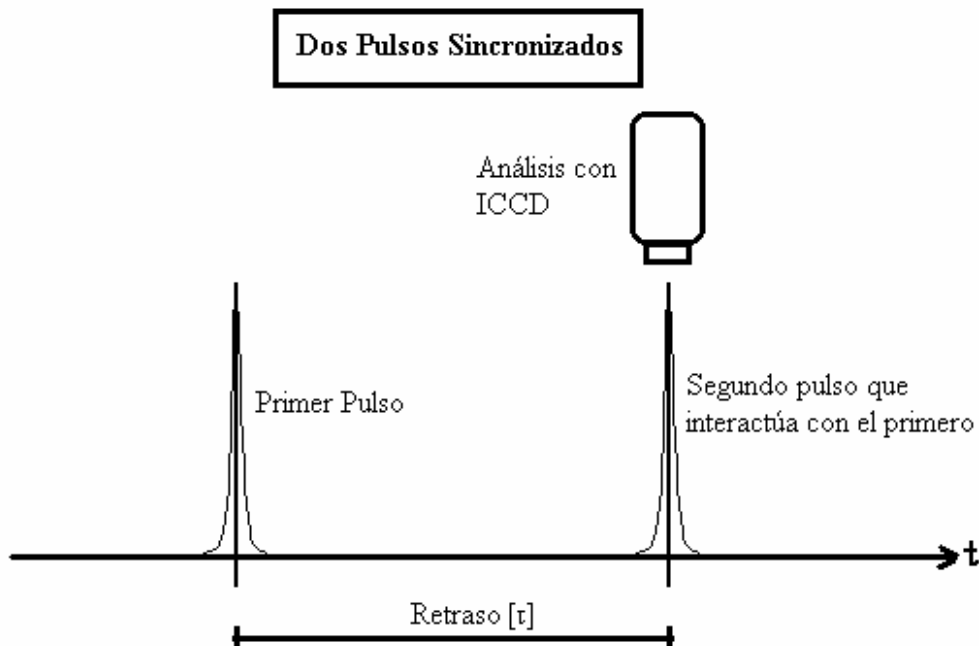
Por otro lado, el Generador *GR-2* controla el disparo de *GR-1*, mediante el pulso llamado *D2*. Asimismo, controla el disparo del láser de KrF mediante la señal indicada como  $D2 + 181.640 \mu s$ , la cual hace que se dispare este láser al mismo tiempo que el láser de Nd:YAG. Entonces, para disparar el láser de KrF con cierto tiempo de retraso ( $\tau$ ) con respecto al otro láser, simplemente hay que poner  $D2 + 181.640 \mu s + \tau$  como parámetro en el pulso que dispara al láser de KrF en *GR-2*.

La sincronía entre láseres es una parte fundamental de este trabajo, dado que permitirá controlar el retraso de un láser con respecto al otro, cuyo pulso fue emitido previamente. Para sincronizar ambos láseres, se hizo uso de separadores de haz, que permiten coleccionar parte de la luz emitida y enviarla a dos fotodiodos (FD) de respuesta rápida,  $t_r = 1 \text{ ns}$ . Las señales resultantes se envían a dos canales diferentes del osciloscopio de forma que se pueden observar los perfiles de emisión de ambos láseres de manera independiente. El perfil de intensidad de los pulsos en el osciloscopio también permite medir el ancho de los mismos a la mitad del máximo de intensidad.

En este trabajo se hace una comparación de resultados encontrados para el experimento realizado con un pulso con respecto al realizado con dos pulsos láser. El experimento de un solo pulso se realiza con el láser de KrF. En el experimento de dos pulsos se usan ambos láseres, donde el primer pulso es emitido por el láser de Nd: YAG y tiempo después, se emite el pulso del láser de KrF. Siempre se estudió la pluma generada por el láser de KrF, con el fin de poder hacer comparaciones válidas. De manera esquemática, esto se muestra en la Fig. 3.4. Se estudiaron diversos retrasos entre láseres, sin embargo, se puso mayor atención al intervalo comprendido entre  $\tau = 2 \mu s$  y  $\tau = 5 \mu s$  debido a que, en estos tiempos es donde se ha observado una mayor reducción en las energías cinéticas de las especies de la pluma.<sup>1</sup> La evolución en el tiempo tuvo su origen en el inicio del plasma inducido por el segundo pulso.

Para medir la fluencia (energía por unidad de área) de los pulsos láser se generó ablación sobre una lámina de aluminio y luego, con la ayuda de un microscopio metalográfico de reflexión directa (*Versamet-2, Union 7342*) se midió el cráter obtenido.



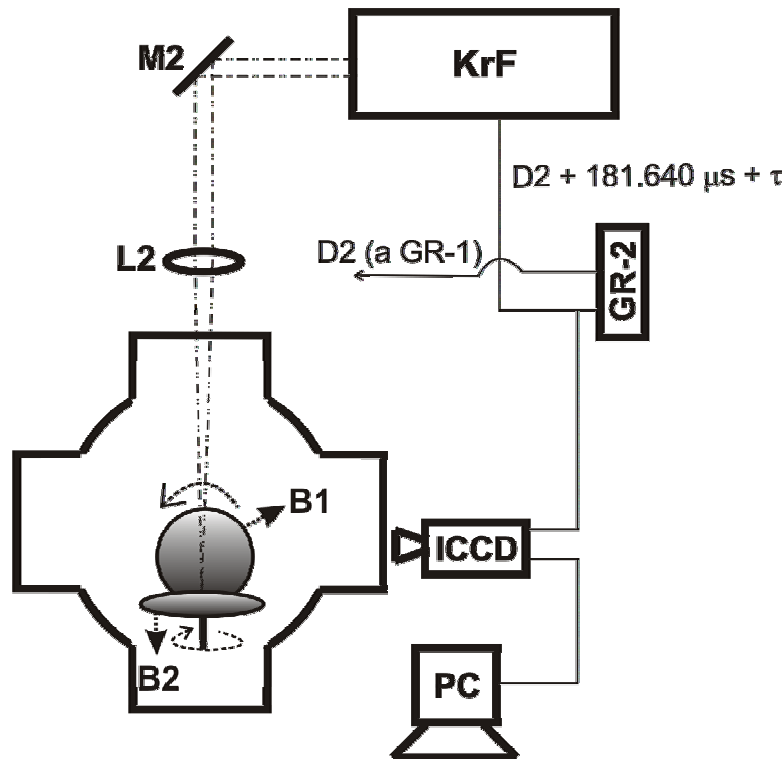


**FIGURA 3.4.** Esquema del estudio del plasma inducido en la configuración de doble pulso láser. El primer plasma es inducido por el láser de Nd: YAG, mientras que el segundo plasma, por el láser de KrF, un tiempo  $\tau$  después del primero. Todos los diagnósticos realizados en este trabajo, siempre son para la pluma inducida por el láser de KrF. En la configuración de doble pulso, ésta corresponde al segundo plasma.

Así, para energías de salida de 230 mJ y 226 mJ de los láseres de KrF y Nd: YAG respectivamente se calculó una fluencia promedio de 120 y 45 J·cm<sup>-2</sup> correspondientemente, con una variación de éstas, hasta de un 10% provocada por ligeras variaciones en las condiciones de enfoque. Estas variaciones se debieron a que, para cada serie de mediciones, fue necesario cambiar los blancos dañados, por otros que tuvieran la superficie pulida.

### 3.3.2. Fotografía Rápida

Esta técnica de diagnóstico permite obtener la evolución espacial de las plumas de los plasmas de ablación inducidos en los blancos de grafito. El arreglo experimental se muestra en la Fig. 3.5. La cámara ICCD está enfocada en el plano generado por los puntos focales de las lentes L1 y L2, donde el campo de visión está determinado por el diámetro de la ventana de la cámara de ablación, es decir 9 cm.



**FIGURA 3.5.** Esquema del arreglo experimental usado para la Fotografía Rápida. M: Espejo, L: Lente, B1 y B2: Blancos del pulso láser de Nd: YAG y KrF respectivamente, GR: Generador de Pulsos con Retraso Variable, PC: Computadora. El pulso emitido por el láser de Nd: YAG incide perpendicularmente a la página.

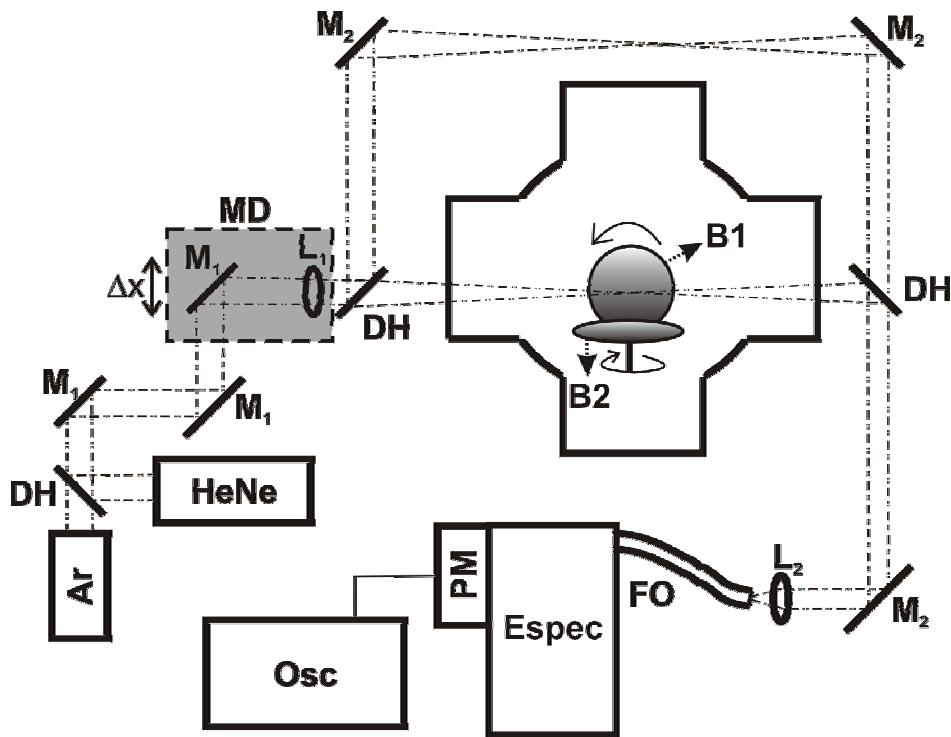
El disparo de la cámara ICCD está sincronizado con el disparo del láser de KrF, sin embargo, la cámara tiene que retrasar la abertura del “obturador” (*gate delay*) con respecto al disparo del láser un tiempo de 1090 ns, tiempo que tarda en generarse y llegar el pulso láser hasta el blanco e iniciar el plasma de ablación. La sincronización de la cámara con el segundo pulso se debe a que se quiere observar la afectación del plasma generado por este pulso debido a la presencia previa de otro plasma de ablación, inducido por el láser de Nd:YAG. La evolución en el tiempo se obtiene retrasando el disparo de la cámara mediante el generador de pulsos con retraso variable interno de la cámara.

Se obtuvieron secuencias en el tiempo de la evolución espacial de cada uno de los plasmas por separado, así como de la interacción entre ellos para un retraso entre láseres de  $\tau = 2 \mu\text{s}$ . El avance en el tiempo en adelante lo denominaremos como  $t$  y se refiere al tiempo que ha transcurrido a partir de la ignición del plasma del láser de KrF, así, las secuencias fueron tomadas desde  $t = 20 \text{ ns}$  hasta  $t = 100 \mu\text{s}$ . Debido a que el plasma se va enfriando, el número de partículas emisoras de luz va disminuyendo conforme

transcurre  $t$ . Entonces, es necesario hacer que la cámara ICCD vaya aumentando el “tiempo de exposición” (*gate width*), además, se debe ir aumentando la ganancia del intensificador.

### 3.3.3. Interferometría de Dos Colores

La determinación de las densidades electrónica y de neutros en el plasma mediante Interferometría de Dos Colores está basada en la medición de la refractividad óptica de la pluma. El método experimental empleado utiliza un interferómetro Mach-Zehnder y consiste en hacer pasar uno de los brazos del interferómetro por la perturbación provocada por el plasma inducido con láser, enfocando este último mediante una lente.<sup>2,3</sup> El arreglo experimental se muestra en la Fig. 3.6. Los dos haces de diagnóstico simultáneamente pasan por el interferómetro de Mach-Zehnder y las longitudes de onda son separadas hasta llegar al espectrógrafo el cual tiene acoplado un tubo fotomultiplicador.



**FIGURA 3.6.** Esquema experimental para realizar el experimento de Interferometría de Dos Colores. DH: Divisor de Haz, L: Lente, M: Espejo, MD: Mesa de Desplazamiento, B: Blancos, FO: Fibra Óptica, Espec: Espectrógrafo, PM: Fotomultiplicador, Osc: Osciloscopio. El pulso emitido por el láser de Nd: YAG incide perpendicularmente a la página.

Los dos colores empleados para hacer este análisis fueron la longitud de onda de emisión del láser de HeNe, 632.8 nm, así como una de las líneas de emisión del láser de Ar-ión multilínea, 457.9 nm. Ambas longitudes de onda se alinean mediante un divisor de cubo y para poder hacer un estudio espacial de la densidad de la pluma se construye un sistema de enfoque ( $M_1$ : *Newport 10D510AL.2* espejo plano hasta  $1/5 \lambda$  de primera superficie con diámetro de 1",  $L_1$ : *Newport KBX082* con distancia focal de 50 cm) sobre una mesa de desplazamiento micrométrico (MD: *Newport, 400* con precisión de 10  $\mu\text{m}$ ), de tal forma que los haces de prueba se pueden mover en la dirección normal al blanco del láser de KrF (B2).

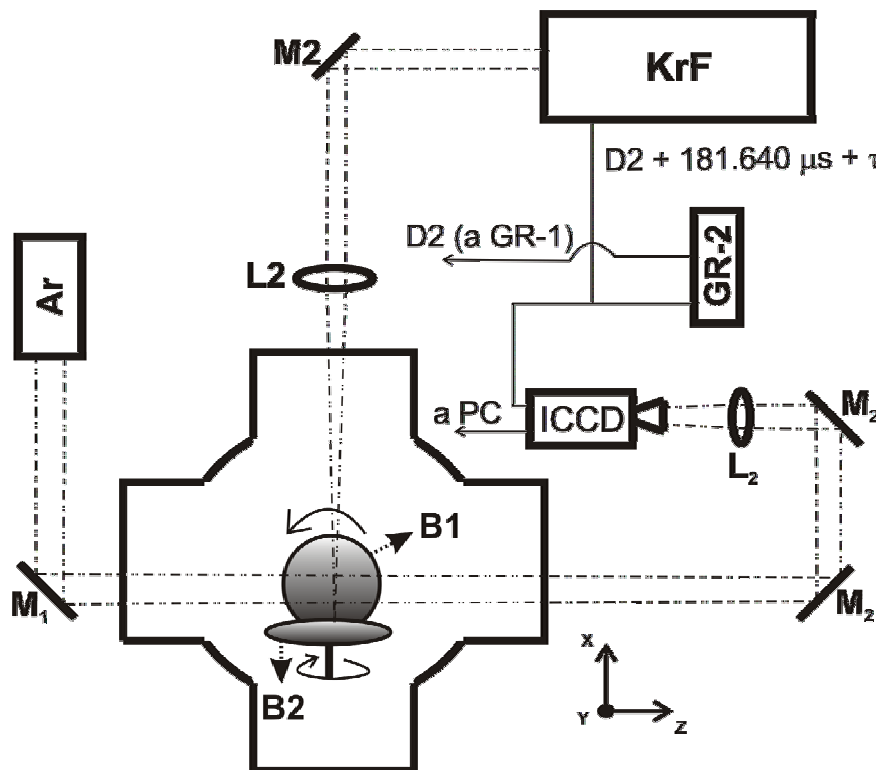
La lente  $L_1$  enfoca los haces de diagnóstico hasta un diámetro de 25  $\mu\text{m}$ , e inicialmente se hace coincidir el foco de ésta con el punto donde se inicia el plasma del blanco B2. Desplazándose en la dirección normal a B2 se hacen estudios de la densidad hasta una distancia  $\Delta x = 1.5 \text{ mm}$  medida a partir de la superficie del blanco. A distancias mayores la relación señal/ruido disminuye de tal forma que hace imposible tener una medición confiable.

El interferómetro Mach-Zehnder, constituido por dos espejos ( $M_2$ : *Newport, 20D20AL.2* espejo plano hasta  $1/10 \lambda$  de primera superficie con diámetro de 2") y dos divisores de haz, está lineado para que a la salida del mismo se tenga la franja cero de interferencia. Esta franja es concentrada mediante una lente plano convexa ( $L_2$ , *Newport KPX112* con distancia focal de 30 cm) sobre una fibra óptica de cuarzo para longitudes de onda en el rango visible y ultravioleta del espectro electromagnético. La fibra óptica está acoplada al monocromador con la red de difracción de 2400 líneas·mm<sup>-1</sup>, el cual se encarga de separar las longitudes de onda de diagnóstico; éste, a su vez, tiene acoplado el tubo fotomultiplicador que manda la señal debida a la intensidad de luz incidente al osciloscopio.

Debido a que uno de los parámetros que proporciona el osciloscopio está dado por un eje temporal, es posible determinar la intensidad de la luz incidente al tubo fotomultiplicador conforme transcurre el tiempo. De esta forma, es posible detectar un corrimiento en las franjas de interferencia, debido a que existe un cambio en el índice de refracción original por la aparición de la pluma del plasma. El estudio se realiza para el

experimento de doble pulso para diferentes retrasos entre láseres y los resultados obtenidos se comparan con aquellos obtenidos para un solo pulso.

Para determinar la densidad electrónica y de neutros, es necesario medir la longitud de camino óptico,  $L$  [ver Ec. (2.78)]. Ésta se mide por medio de fotografía de sombras, cuyo arreglo experimental se muestra en la Fig. 3.7. El láser de Ar-ión ( $\lambda = 457.9$  nm) ilumina la región donde se expande inicialmente la pluma generada por el láser de KrF, en los experimentos de un pulso y de dos pulsos. La imagen es captada por la cámara ICCD, la cual está sincronizada con el disparo del láser de KrF y tiene como tiempo cero el momento en que inicia el plasma de ablación inducido por este láser. Para obtener imágenes a tiempos posteriores se retrasa el disparo del obturador. Dado que la pluma se expande sin restricción, hay un momento en que las partículas se salen del campo de visión y la sombra se pierde, por lo que las fotografías de sombras se pueden observar hasta un tiempo de 200 ns.



**FIGURA 3.7.** Esquema experimental para obtener las fotografías de sombras y a partir de éstas encontrar la longitud  $L$  del plasma. M: Espejo, L: Lente, B: Blancos, GR: Generador de Pulsos con Retraso Variable, PC: Computadora.

Cabe aclarar que la imagen o sombra observada tiene como eje de expansión la dirección normal al blanco B2 (eje x), sin embargo, la longitud de camino óptico,  $L$ , recorrida por los haces de diagnóstico es paralela a la superficie de este blanco (eje z). Ahora bien, como la incidencia del haz láser de KrF es normal a la superficie del blanco, entonces la pluma emitida tendrá simetría axial, entonces, el eje de simetría es perpendicular a la superficie, pasando por el punto focal.<sup>4</sup> Bajo esta condición, es posible obtener  $L$  a partir de la imagen captada por la ICCD, la cual muestra la sombra del plasma en el eje que se ha denominado eje y.

### 3.3.3.1. Determinación de la Diferencia de Fase

Un interferograma muestra la variación de la intensidad de la luz debido al corrimiento de franjas de interferencia dado por un cambio en el índice de refracción del medio. El tiempo cero fue definido al inicio del plasma generado por el láser de KrF y la señal inicia cuando la pluma alcanza la posición del haz de prueba, es decir, el haz perteneciente al brazo del interferómetro que pasa por el plasma. Esta señal perdura hasta que la pluma se desplace a una posición más lejana.

La irradiancia de dos ondas planas interferentes [ver Ec. (2.57)] está dada por:

$$I(t) = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos \phi(t), \quad (3.1)$$

donde  $I_i$  es la irradiancia del brazo  $i$  del interferómetro y  $\phi$  es el corrimiento de fase entre los haces interferentes.

La irradiancia inicial  $I(0)$  es directamente medida definiendo una *línea base* para la gráfica y usando la Ec. (3.1) la diferencia de fase inicial  $\phi(0)$  puede ser determinada. Previamente se miden las irradiancias  $I_i$  de cada uno de los brazos del interferómetro. Para un tiempo dado  $t$ , siguiendo el mismo procedimiento, la diferencia de fase  $\phi(t)$  puede ser calculada. Así, el corrimiento de fase que existe en las franjas de interferencia desde el tiempo cero hasta  $t$  está dado por:

$$\Delta\phi(t) = |\phi(t) - \phi(0)|. \quad (3.2)$$

Por otro lado, para verificar la repetibilidad del evento, se obtiene un  $\Delta\phi(t)$  promedio a partir de cinco repeticiones por longitud de onda de cada experimento. Esto fue realizado para el intervalo de distancias estudiado que corre de 0.5 a 1.5 mm,

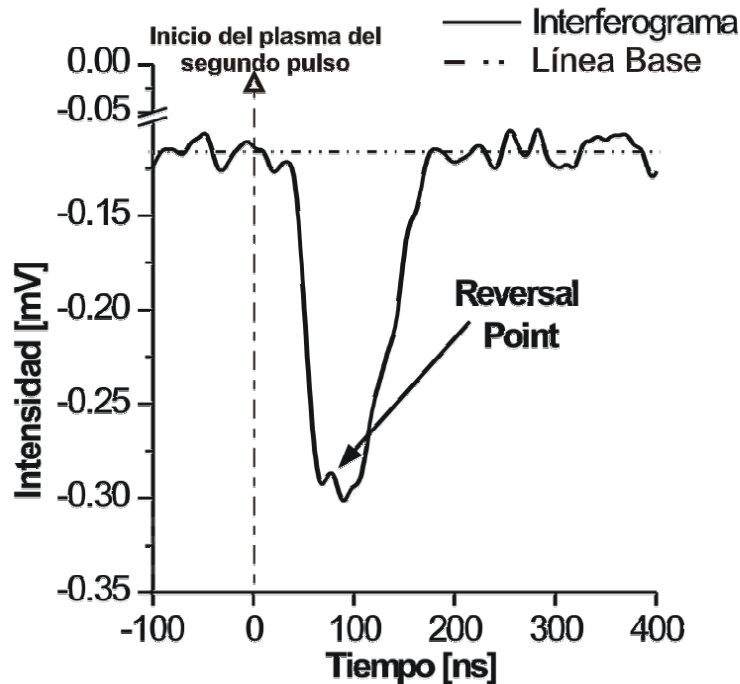
medidas a partir de la superficie del blanco B2. Se intentó medir a distancias mayores, pero solo se tiene una buena relación señal sobre ruido hasta 1.5 mm.

$\Delta\phi(t)$  aumenta mientras la pluma se expande hasta que su valor alcanza el punto llamado “*reversal point*” (punto de retorno) indicando cuándo ocurre el máximo de densidad para la distancia estudiada. Después de ese instante,  $\Delta\phi(t)$  gradualmente reducirá su valor hasta que las partículas se hayan alejado más allá que la distancia estudiada regresando así a la fase inicial del interferograma (ver figura 3.8).

Una vez encontrada  $\Delta\phi$  para cada tiempo  $t$  y longitud de onda  $\lambda$ , siguiendo la Ec. (2.78) para cada  $\lambda$ , se encuentra fácilmente la densidad electrónica  $N_e$  y de neutros  $N_0$  de la pluma al tiempo  $t$  resolviendo el sistema de ecuaciones lineales dado por:

$$\begin{aligned}\Delta\phi_1(t)\lambda_1 &= 2\pi L[\alpha_0(\lambda_1)N_0(t) - \alpha_{e1}(\lambda_1)N_e(t)] \\ \Delta\phi_2(t)\lambda_2 &= 2\pi L[\alpha_0(\lambda_2)N_0(t) - \alpha_{e2}(\lambda_2)N_e(t)]\end{aligned}\quad (3.3)$$

donde  $L$  fue medido mediante fotografía de sombras.



**FIGURA 3.8.** Interferograma típico tomado de la traza del osciloscopio. Este ejemplo fue tomado con una longitud de onda del haz de prueba de 632.8 nm a una distancia de 0.5 mm de la superficie del blanco del segundo pulso.

Para átomos de carbono, a partir de las Ecs. (2.73 y 2.74) se encuentra que<sup>5</sup>  $\alpha_0(\omega) \cong 6.08 \times 10^{-24} \text{ cm}^3$  y las polarizabilidades electrónicas para  $\lambda_1 = 632.8 \text{ nm}$  y  $\lambda_2 = 457.9 \text{ nm}$  son  $\alpha_{e1} = 1.8 \times 10^{-23} \text{ cm}^3$  y  $\alpha_{e2} = 9.4 \times 10^{-22} \text{ cm}^3$  respectivamente. La precisión en la medida de ambas densidades depende de tener las dos longitudes de onda con la mayor separación posible, dado que las diferencias de fase,  $\Delta\phi_1$  y  $\Delta\phi_2$ , tendrán una mayor diferencia numérica entre sí [Ver Ec. (2.77)].

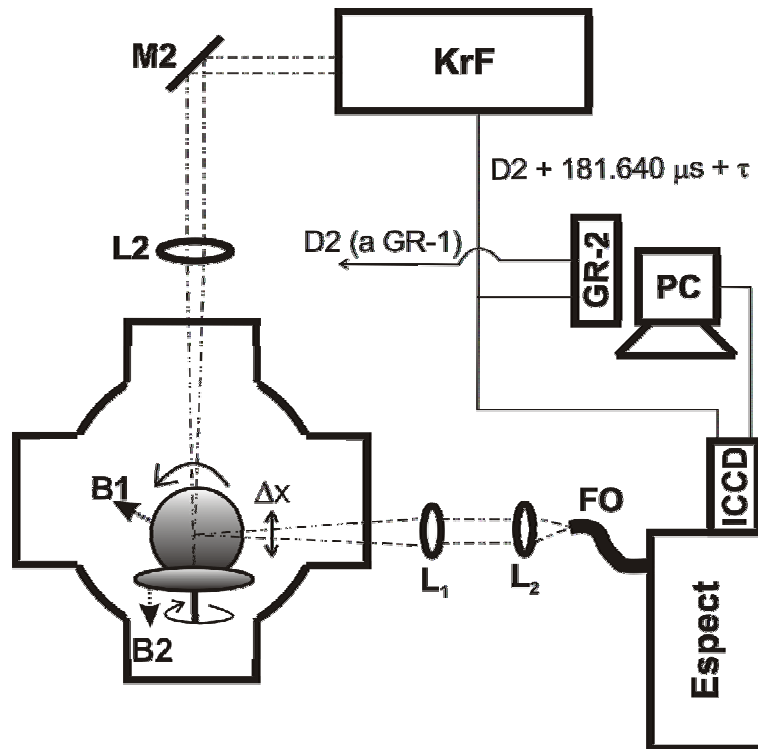
### 3.3.4. Espectroscopía Óptica de Emisión

Mediante esta técnica es posible conocer la temperatura y densidad electrónica, de la pluma del plasma y consiste en analizar las líneas de emisión del plasma de ablación, haciendo la suposición de que el plasma se encuentra en Equilibrio Termodinámico Local y que el ensanchamiento de las líneas es debido al Efecto Stark (Ver Sección 2.1).

El análisis por espectroscopía de emisión de los plasmas de ablación se realizó con el fin de complementar el diagnóstico hecho por interferometría de dos colores. Esto se debe a que esta última permite estudiar cerca del blanco, lo cual, por espectroscopía de emisión, no es posible ya que, la radiación brehmsstrahlung no permite observar las líneas de emisión del plasma. Al igual que en el caso de interferometría, el estudio se realizó sobre el eje normal al blanco del láser de KrF (B2) pero a una distancia  $\Delta x$  mayor; en este caso el intervalo de distancias analizadas corrió desde 3 mm hasta 6 cm. Sin embargo, las líneas de emisión del plasma útiles para calcular su temperatura solo fueron visibles hasta una distancia de 10 mm. Para la configuración de doble pulso, se estudiaron diversos retrasos entre láseres.

El arreglo experimental se muestra en la Fig. 3.9. La luz del plasma es resuelta en sus longitudes de onda de emisión por una rejilla de difracción de  $2400 \text{ líneas}\cdot\text{mm}^{-1}$  contenida en el espectrógrafo. El espectro de emisión es capturado por la cámara ICCD y enviado a una computadora, en la cual, mediante el programa *Winspec32<sup>R</sup>* se hace la captura del mismo.





**FIGURA 3.9.** Esquema experimental para el diagnóstico por espectroscopía de emisión de los plasmas de ablación. M: Espejo, L: Lente, B: Blanco, FO: Fibra Óptica, Espect: Espectrógrafo, GR: Generador de Pulsos con Retraso Variable, PC: Computadora. El pulso emitido por el láser de Nd: YAG incide perpendicularmente a la página.

La luz del plasma fue captada por un colector de luz formado por las lentes  $L_1$  y  $L_2$ .  $L_1$ , lente de cuarzo con una distancia focal de 20 cm (*Newport, SPX028*) dispuesta de tal forma que el punto focal coincide con la normal al blanco B2 que pasa por el punto focal de la lente que enfoca el láser de KrF,  $L_2$ . Por otro lado,  $L_2$ , lente de cuarzo con una distancia focal de 7.5 cm (*Newport, SPX019*) se dispuso con sus puntos focales coincidentes, de un lado con el punto focal de  $L_1$  y del otro lado con el inicio de la fibra óptica, FO. Así, la luz que fue resuelta por el espectrógrafo provenía de una región espacial específica, pudiendo de esta forma hacer un estudio a diferentes distancias del blanco del láser de KrF.

A fin de maximizar la relación señal sobre ruido, la abertura de la entrada del monocromador se estableció en 150  $\mu\text{m}$ . Para determinar el ensanchamiento instrumental se hizo incidir el haz de un láser He-Ne en el espectrógrafo y se midió el ancho a la mitad del máximo (FWHM), obteniendo un valor de 0.02 nm. Dicho ancho es atribuible a los sistemas ópticos del monocromador dado que, esta fuente de luz es de alta pureza

espectral y el único ensanchamiento intrínseco es el natural (Ver sección 2.1.3.). La calibración en longitud de onda del espectrógrafo fue realizada con una lámpara espectral de Hg (*Oriel, 6035*).

La cámara ICCD acoplada al monocromador captó la luz y la envió a la computadora. Se tomó la evolución temporal del espectro de emisión con un tiempo de exposición que varió desde 20 ns para la distancia de 3 mm hasta 40 ns para la distancia de 1 cm, con un tiempo entre ventanas igual al tiempo de exposición. El tiempo cero es cuando inicia el plasma de ablación del blanco B2.

Una vez adquiridas las líneas de emisión en el programa *Winspec32*<sup>R</sup>, el análisis se realiza en el programa *Microcal Origin*<sup>R</sup> 7.0, el cual permite ajustar funciones matemáticas sobre una serie de datos. En este caso, sobre el perfil de cada una de las líneas de emisión empleadas, se hizo un ajuste de una función Voigt, la cual es una convolución de las funciones lorentziana y gaussiana; esto con el fin de considerar todos los mecanismos involucrados en el ensanchamiento de las líneas de emisión (Ver Sección 2.1.3).

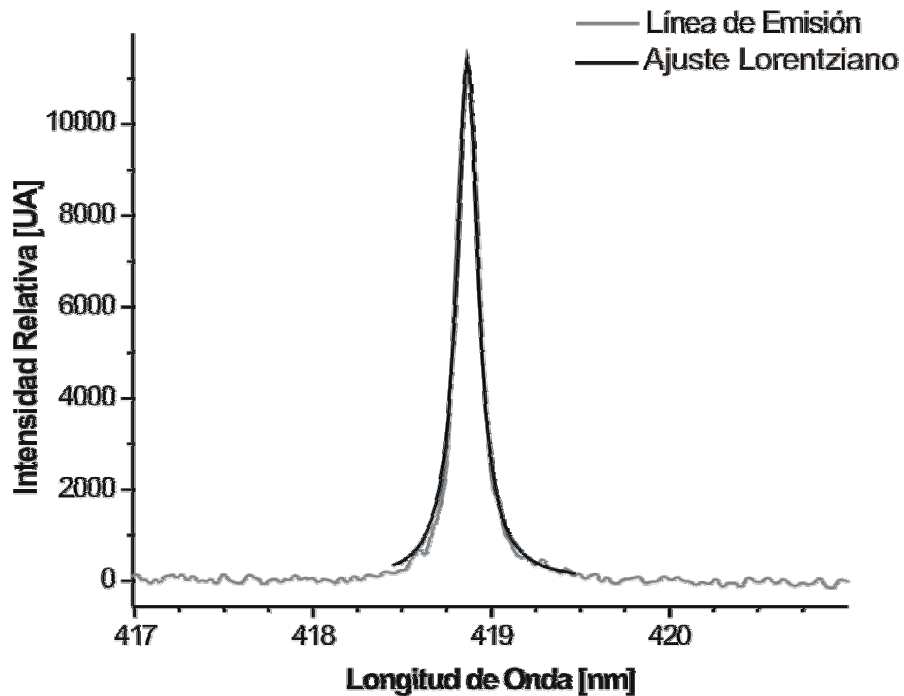
Sin embargo, se puede observar que la función lorentziana reproduce prácticamente el perfil de la línea de emisión (Ver Fig. 3.10), cuya forma matemática está dada por:

$$y = y_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{w}{4(x - x_c)^2 + w^2}, \quad (3.4)$$

donde,  $w$ : FWHM,  $A$ : Área,  $x_c$ : coordenada  $x$  del pico,  $y_0$ : línea base de la función. De esta forma, se consideró que el perfil de todas las líneas de emisión es un perfil lorentziano. Para hacer este ajuste, primero se estableció una línea base al espectro, con el fin de restar la radiación brehmsstrahlung y, posteriormente, se ajustó la función al perfil de la línea. Por otro lado, el perfil observado en la emisión del láser de He-Ne, empleado para medir en ensanchamiento instrumental, también es ajustado por una función de Lorentz. Dado que las líneas de emisión del plasma pueden ajustarse también con una función de este tipo, entonces, el FWHM real,  $\Delta\lambda_R$ , de la línea de emisión está dado por:

$$\Delta\lambda_R = \Delta\lambda_{OBS} - \Delta\lambda_I, \quad (3.5)$$

donde:  $\Delta\lambda_{OBS}$ : Ancho Medido,  $\Delta\lambda_I$ : Ancho Instrumental



**FIGURA 3.10.** Ajuste de una función lorentziana sobre el perfil de las líneas de emisión. En este caso corresponde a la longitud de onda de emisión de 418.69 nm de C III.

Los parámetros requeridos para hacer el cálculo de la temperatura y la densidad electrónica son la intensidad (Área bajo la curva) y el ancho a la mitad del máximo respectivamente. Dichos parámetros los proporciona directamente el programa de computadora.

El cálculo de la temperatura y la densidad electrónica del plasma se realizó con líneas de emisión de C II y C III, carbono una y dos veces ionizado respectivamente, para la distancia de 3 mm, y únicamente de C II para la distancia de 10 mm. Esto se debe a que para 10 mm, la relación señal/ruido de las líneas de emisión de C III es muy pequeña. La identificación de las líneas y la información de sus parámetros asociados, es decir probabilidad de transición, degeneración y energía del nivel superior, fue obtenida de la base de datos espectrales en línea del NIST.<sup>5</sup>

**REFERENCIAS**

1. C. Sánchez-Aké, H. Sobral, P. Ramos-Alvarez, C. Lemen and M. Villagrán-Muniz. "Ion kinetic energy control in dual-pulsed laser ablation on graphite targets," aceptado para su publicación en J. Phys.: Conference Series
2. C. D. David. Appl. Phys. Lett. **11**, 394 (1967).
3. M. Murphy, C. Glasheen, F. A. Moscatelli and T. D. Donnelly. Phys. Rev. A, **55**, R2543, (1997).
4. R.K. Singh, J. Narayan. Phys. Rev. B, **41**, 8843, (1990).
5. Yu. Ralchenko, F.-C. Jou, D.E. Kelleher, A.E. Kramida, A. Musgrove, J. Reader, W.L. Wiese and K. Olsen. *NIST Atomic Spectra Database*, (version 3.0.2, 2005). [En línea]. Disponible en: <http://physics.nist.gov/asd3>. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.

## CAPÍTULO 4

### RESULTADOS Y DISCUSIÓN

A fin de analizar cómo afectan las partículas remanentes producidas por el primer plasma de ablación sobre el segundo, se estudiaron inicialmente las propiedades físicas del segundo plasma (densidad y temperatura) y, posteriormente, la dinámica del plasma. Los resultados obtenidos en el experimento de doble pulso siempre se contrastan con los obtenidos en el experimento de un solo pulso,

#### 4.1. DETERMINACIÓN DE LA DENSIDAD ELECTRÓNICA Y DE NEUTROS POR MEDIO DE INTERFEROMETRÍA DE DOS COLORES

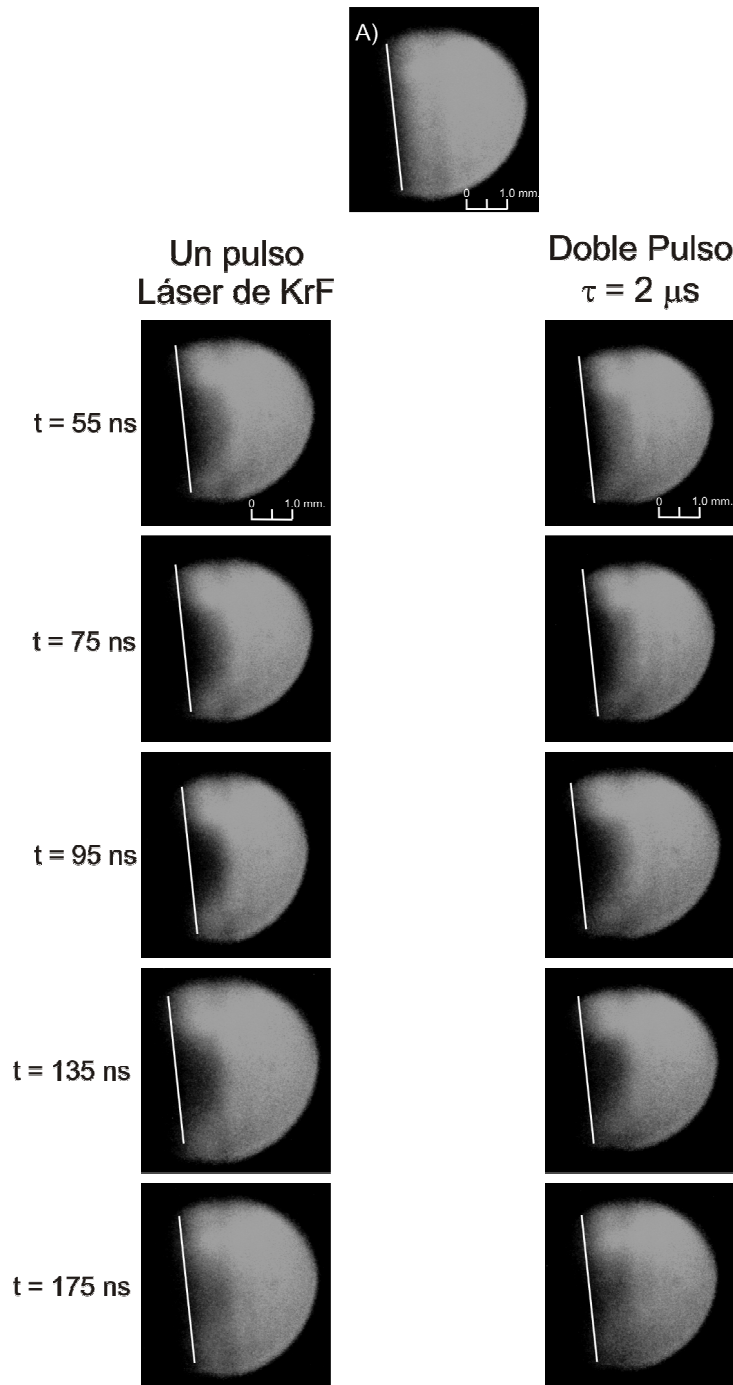
Las densidades electrónica y de neutros se obtienen mediante Interferometría de Dos Colores siguiendo el procedimiento explicado en la Sección 3.3.3. Empleando el sistema de ecuaciones:

$$\begin{aligned}\Delta\phi_1(t)\lambda_1 &= 2\pi L[\alpha_0(\lambda_1)N_0(t) - \alpha_{e1}(\lambda_1)N_e(t)] \\ \Delta\phi_2(t)\lambda_2 &= 2\pi L[\alpha_0(\lambda_2)N_0(t) - \alpha_{e2}(\lambda_2)N_e(t)]\end{aligned}\quad (4.1)$$

donde  $\Delta\phi$  es el corrimiento de fase,  $\lambda$  la longitud de onda de diagnóstico,  $L$  la longitud de camino óptico del medio,  $\alpha_0$  la polarizabilidad de las especies neutras,  $\alpha_e$  la polarizabilidad electrónica,  $N_0$  la densidad de neutros y  $N_e$  la densidad electrónica; es posible determinar de manera simultánea ambas densidades para un mismo tiempo  $t$ .

Como se mencionó en la Sección 3.3.3, la fotografía de sombras fue la herramienta utilizada para obtener la longitud del camino óptico recorrido por los haces de diagnóstico. Estas fotografías se muestran en la Fig. 4.1, en las cuales, el cálculo de  $L$  se obtiene haciendo la suposición de que existe simetría axial en la pluma del plasma<sup>1</sup> para ambos experimentos. Así, para obtener la longitud del camino óptico recorrido por los haces de diagnóstico, dada la simetría existente, basta con realizar una medición de  $L$  en la dirección perpendicular a la trayectoria de propagación del plasma. Como se observa en la Fig. 4.1, esta medición no varía significativamente en el transcurso del tiempo; asimismo, la perturbación sólo es visible hasta  $t \leq 200$  ns, y en la dirección normal a la superficie del blanco (eje  $x$ ), hasta una distancia de 2 mm. Sin embargo,  $x = 1.5$  mm fue la máxima distancia al blanco B2 analizada, ya que a distancias mayores la relación señal

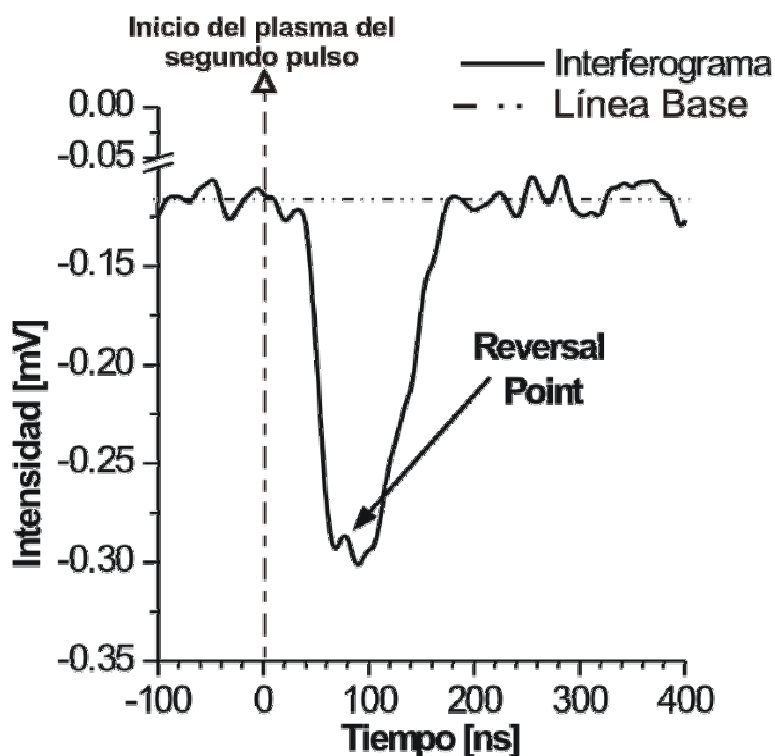
sobre ruido de los interferogramas fue muy pequeña. La razón de no ver más lejos la sombra del plasma es que, mientras más lejos se encuentra el punto de observación, la densidad baja; sin embargo, cerca del blanco se encuentra una zona densa, que es fácilmente detectada mediante esta técnica.



**FIGURA 4.1.** Fotografía de sombras para el experimento de un solo pulso y para el de doble pulso con un retraso entre láseres  $\tau = 2 \mu\text{s}$ . El tiempo está medido a partir del inicio del plasma inducido por el láser de KrF. La fotografía superior (A) muestra únicamente la superficie del blanco B2 (indicado con la línea blanca) sin el plasma. El blanco B1 no aparece en las fotografías.

Considerando una densidad electrónica del plasma del orden de  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (dato obtenido a posteriori), entonces la frecuencia del plasma, siguiendo la Ec. (2.83) tiene un valor del orden de  $10^{13} \text{ Hz}$ . Por lo tanto, la longitud de onda crítica del mismo [Ec. (2.85)], es del orden de  $10^{-5} \text{ m}$ . Como la longitud de onda con la que se iluminó el plasma está en el visible (457.9 nm), la luz incidente únicamente sufre una deflexión debido a la presencia del plasma y permite formar la fotografía de sombras.

Dado que el tamaño del plasma a estas distancias no varía significativamente, el valor de  $L$  fue considerado constante para el intervalo de tiempo que fue posible estudiar mediante interferometría, siendo de 0.5 y 0.4 mm para las distancias de 0.5 y 1.5 mm a la superficie del blanco B2 respectivamente. Además, tampoco se encuentra una variación significativa en el valor de  $L$  para el experimento de un solo pulso, con respecto al experimento de doble pulso para diferentes retrasos entre láseres. De esta forma, los valores de  $L$  antes mencionados, se aplican para todos los experimentos realizados.



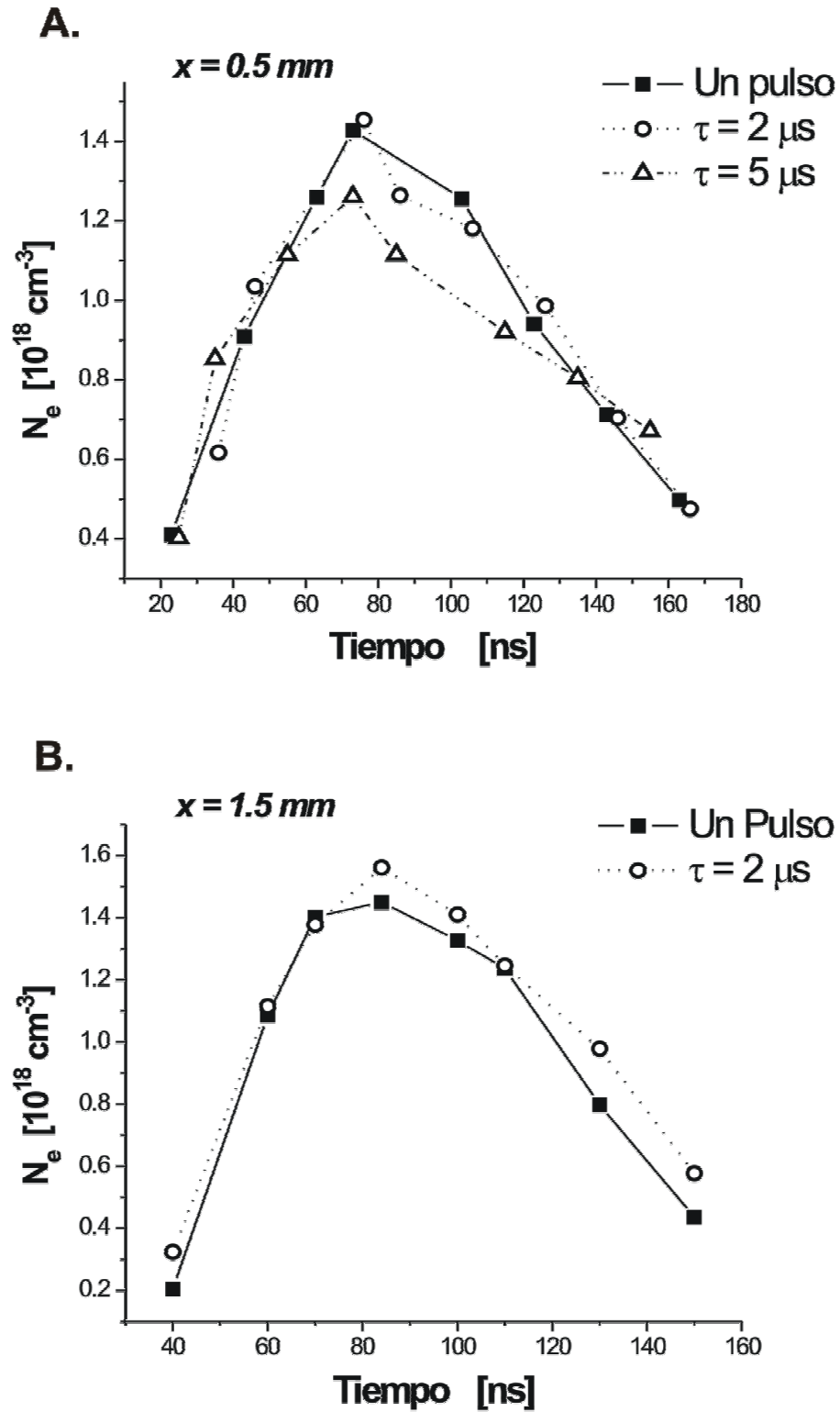
**FIGURA 4.2.** Interferograma típico tomado de la traza del osciloscopio. Este ejemplo fue tomado con una longitud de onda del haz de prueba de 632.8 nm a una distancia de 0.5 mm de la superficie del blanco del segundo pulso.

La señal obtenida en el osciloscopio, debida al corrimiento de las franjas de interferencia producido por la aparición del plasma, comienza unos cuantos nanosegundos después del inicio del plasma (Ver Fig. 4.2). Esto es debido a que las partículas eyectadas tardan ese tiempo en alcanzar la distancia estudiada. Con el fin de tener una relación señal sobre ruido aceptable, para la distancia de 0.5 mm a partir de la superficie del blanco B2, los valores de densidad se contabilizan desde  $t = 25$  ns y, para la distancia de 1.5 mm, a partir de 40 ns. Después de 165 ns la pluma está localizada a una distancia mayor del blanco B2 y la señal se reduce significativamente, por lo que, hasta ese tiempo se tiene un cálculo confiable de las densidades.

La Figura 4.3 muestra la evolución temporal de la densidad electrónica  $N_e$  obtenida a las distancias representativas de 0.5 y 1.5 mm del blanco B2 para el experimento de un solo pulso y para dos retrasos  $\tau$  entre láseres, en el caso de la Fig. 4.3-A y para un retraso  $\tau$  entre láseres para 4.3-B. Cada punto corresponde a un promedio de cinco experimentos independientes. Así, la incertidumbre de la densidad para cada tiempo está dada por la desviación estándar del promedio de estos cinco experimentos, siendo ésta menor al 25% en todos los casos; sin embargo, las barras de error no se muestran en los gráficos para tener una mejor claridad en la exposición de los resultados.

Para distancias mayores a 5 mm, las velocidades de las especies de la pluma del segundo pulso fueron reducidas por un factor de dos en comparación con las obtenidas en el experimento de un solo pulso.<sup>2</sup> Entonces, era de esperarse que hubiesen diferencias en los valores de la densidad electrónica ( $N_e$ ) en el experimento de doble pulso con respecto a la configuración de un solo pulso. Sin embargo, la Fig. 4.3 muestra que para todos los retrasos entre láseres estudiados, la evolución de  $N_e$  es comparable con los resultados obtenidos empleando una sola fuente de excitación. Asimismo, tampoco se encuentran diferencias (dentro del error experimental) en la densidad electrónica para las diferentes distancias medidas a partir de la superficie del blanco B2.





**FIGURA 4.3.** Evolución temporal de la densidad electrónica para las distancias representativas de: **A.** 0.5 mm y **B.** 1.5 mm medidas a partir de la superficie del blanco B2. Los resultados mostrados para la configuración de doble pulso son para los retrasos entre láseres de 2 y 5  $\mu\text{s}$ .

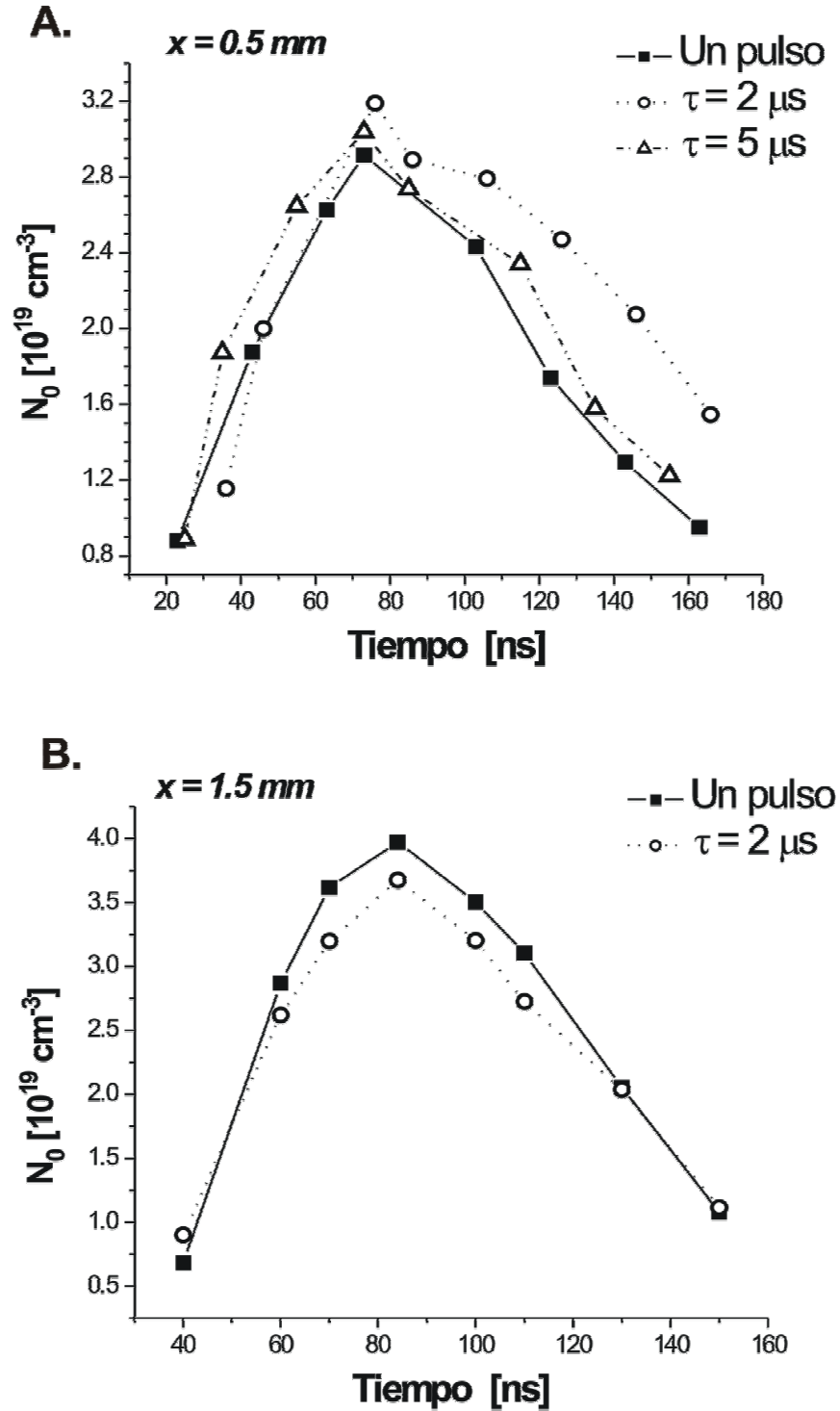
Para  $x = 0.5$  mm las densidades electrónicas inicial y final son similares, con un valor de  $4.0 (1.0) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ; en tanto que el máximo se alcanza en  $t = 74$  ns con un valor de  $\sim 1.4 (0.1) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Por otro lado, para la distancia más alejada de estudio ( $x = 1.5$  mm), los valores mínimos de densidad son de  $2.0 (0.5) \times 10^{17}$  y  $3.2 (1.0) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  para el experimento de un solo pulso y para el de doble pulso con  $\tau = 2 \mu\text{s}$  respectivamente. El máximo de densidad tiene un valor de  $\sim 1.5 (0.3) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  en  $t = 84$  ns. Para esta última distancia, el tiempo final es menor al que tiene el diagnóstico para  $x = 0.5$  mm. Esto se debe a la pobre razón señal sobre ruido encontrada a tiempos posteriores, haciendo que el error experimental se incrementara significativamente. Las cantidades en paréntesis indican la incertidumbre asociada a cada valor experimental.

Resolviendo la Ec. (4.1) es posible determinar la evolución de la densidad de neutros [ver Fig. 4.4] para el valor correspondiente de la densidad electrónica mostrado en la Fig. 4.3.

Tanto en la Fig. 4.3-B, como en la Fig. 4.4-B, solo se contrastan los resultados obtenidos para el experimento de un solo pulso, así como para los correspondientes a la configuración de doble pulso con  $\tau = 2 \mu\text{s}$ . Esto se hace con el fin de tener una mejor claridad en la presentación de los resultados, ya que el plasma inducido con doble pulso láser y  $\tau = 5 \mu\text{s}$  tiene una densidad electrónica y de neutros similar a las obtenidas en las otras configuraciones.

La Figura 4.4 muestra la evolución temporal de la densidad de neutros. Para la distancia de 0.5 mm a partir del blanco B2, la densidad alcanza un máximo de  $\sim 3.0 (0.2) \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  al tiempo  $t = 74$  ns después del inicio del plasma. Para  $x = 1.5$  mm, el máximo de intensidad tiene un valor de  $3.7 (0.7) \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  en  $t = 84$  ns. Las densidades iniciales son  $8.8 (0.6) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  y  $6.8 (2.0) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  para las distancias al blanco B2 de 0.5 y 1.5 mm respectivamente. Estos valores en la densidad de neutros indican que el plasma tiene, en promedio, un grado de ionización del 5%.

En la Figura 4.4-A se puede observar que para los tiempos finales, hay algunas diferencias entre el experimento de  $\tau = 2 \mu\text{s}$  y los otros; sin embargo, estas discrepancias en los valores están dentro del error experimental.



**FIGURA 4.4.** Evolución temporal de la densidad de neutros a las distancias representativas de: **A.** 0.5 mm y **B.** 1.5 mm medidas a partir de la superficie del blanco B2. Los resultados mostrados para la configuración de doble pulso son para los retrasos entre láseres de 2 y 5  $\mu\text{s}$ .

Entonces, es posible decir que para todas las distancias a partir de la superficie del blanco B2 estudiadas, las densidades en todos los experimentos realizados son comparables. Además, la densidad electrónica y de neutros encontradas en este trabajo son comparables a las halladas en otros plasmas de ablación de grafito inducidos bajo las mismas condiciones, y estudiados mediante la misma técnica de diagnóstico.<sup>3,4</sup>

Los resultados encontrados mediante Interferometría de Dos Colores muestran que en las etapas iniciales de la evolución del plasma, las densidades electrónica y de neutros en los experimentos de uno y doble pulso son muy similares. En el experimento de doble pulso, estos resultados arrojan que el plasma inducido por el láser de KrF no ha interactuado con el plasma producido por el láser de Nd: YAG o, al menos, esta interacción no pudo ser detectada. Esto ocurre hasta la distancia a B2 máxima estudiada mediante esta técnica (1.5 mm).

## **4.2. DETERMINACIÓN DE LA TEMPERATURA Y LA DENSIDAD ELECTRÓNICA POR MEDIO DE ESPECTROSCOPIA DE EMISIÓN**

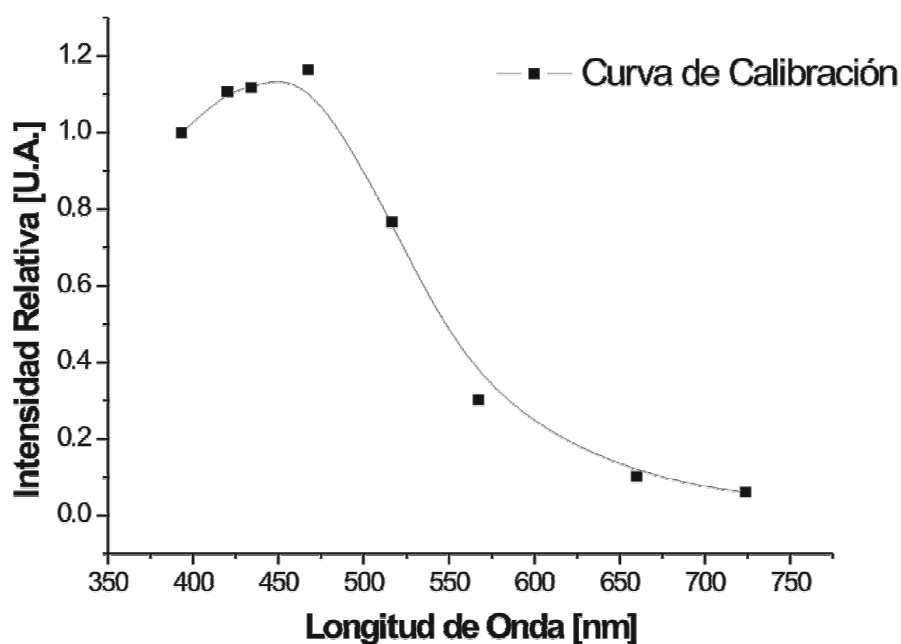
Para obtener la evolución temporal de la temperatura y la densidad electrónica, el presente trabajo emplea la técnica de Espectroscopía de Rompimiento Inducido con Láser (*Laser Induced Breakdown Spectroscopy, LIBS*). Como se mencionó en la Sección 3.3.4, la validez de este método radica en suponer que el plasma generado se encuentra bajo el régimen de Equilibrio Termodinámico Local (ETL); asimismo, el mecanismo principal de ensanchamiento de las líneas de emisión es debido a la acción de un campo eléctrico debido a partículas cargadas (Efecto Stark) presentes en la pluma del plasma.

Al producirse los plasmas de ablación en los blancos de grafito, las líneas de emisión de las especies se comienzan a definir. Obteniendo el área bajo la curva y el ancho a la mitad del máximo (*Full Width Half Maximum, FWHM*) de éstas se determina la evolución temporal de la temperatura y la densidad electrónica (Ver Sección 2.1).

#### 4.2.1. Identificación de Especies

Para obtener la Temperatura del plasma a un tiempo  $t$  usando gráficos de Boltzmann (Ver Sección 4.2.2), es necesario que las líneas espectrales empleadas sean de la misma especie iónica. Por esta razón, para obtener la mayor cantidad posible de líneas de emisión de las especies iónicas de carbono, se hizo un barrido con el espectrógrafo desde 390 hasta 750 nm.

Como se obtuvo el espectro de emisión en diversas regiones, la cámara ICCD tuvo que ser calibrada en intensidad debido a que ésta varía su sensibilidad de acuerdo a la parte del espectro electromagnético en que se esté trabajando. Esta medición se realizó mediante una lámpara de Xe de 150 W (Ealing, 0525) que consta de un gráfico de intensidad contra longitud de onda proporcionado por el fabricante. Con este dato y la intensidad medida con la ICCD se obtuvo un gráfico de Intensidad relativa vs. Longitud de onda (ver Fig. 4.5), en el cual la intensidad absoluta se normalizó a la obtenida en la región centrada en 393 nm. Entonces, para tener la misma escala de intensidades en todas las regiones del espectro estudiadas, bastaba con dividir el valor medido de la intensidad con la ICCD entre el valor correspondiente de la calibración mostrado en la Fig. 4.5.



**FIGURA 4.5.** Respuesta en intensidad de la cámara ICCD con la longitud de onda. La intensidad está normalizada a la obtenida en la región centrada en 393 nm.

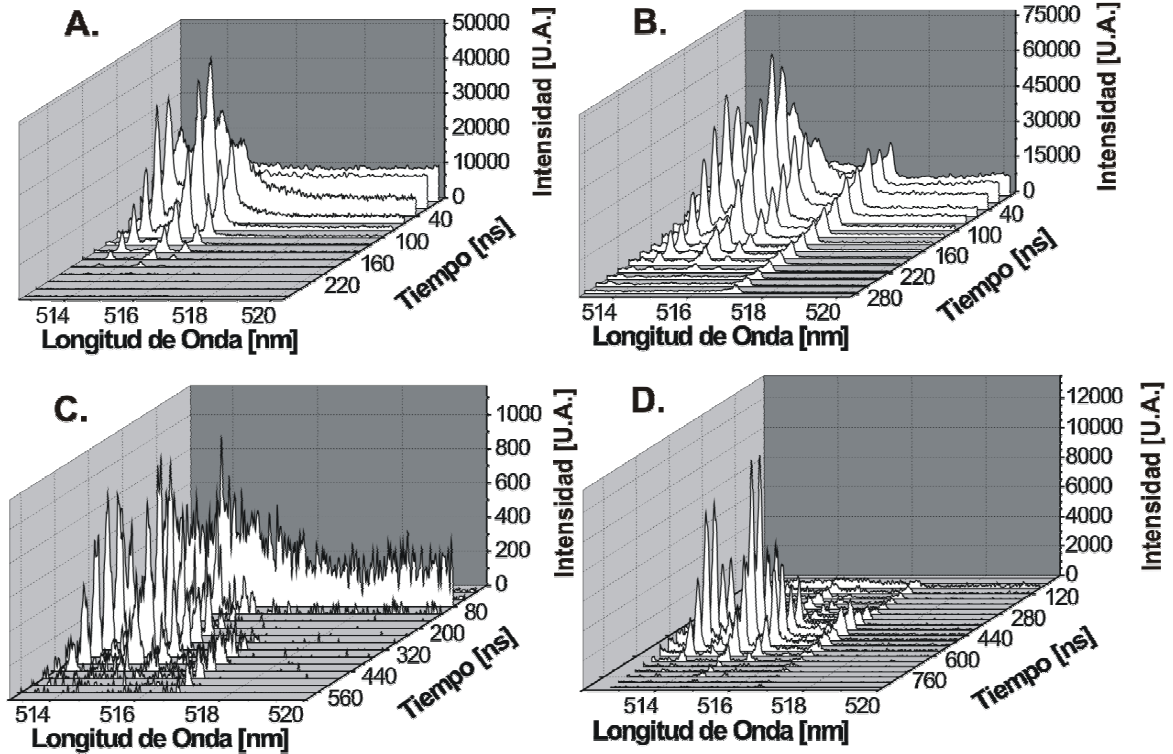
Línea	Especie	$\lambda$ [nm]	$A_k$ [ $10^8 \text{ s}^{-1}$ ]	$E_k$ [eV]	$g_k$
1	C III	418.69	3.5	42.970355	9
2	C III	464.74	0.726	32.201707	5
3	C III	466.59	0.678	40.88299	5
4	C II	391.90	0.636	19.49454	2
5	C II	392.07	1.27	19.49454	2
6	C II	515.11	0.416	23.11607	4
7	C II	564.81	0.197	22.898762	4
8	C II	566.25	0.293	22.898762	4
9	C II	569.59	0.427	34.279504	5
10	C II	657.81	0.363	16.333122	4
11	C II	658.29	0.362	16.331739	2
12	C II	723.13	0.352	18.045808	4
13	C II	723.64	0.422	18.045986	6

**Tabla 4.1.** Transiciones de las especies iónicas de C empleadas para el cálculo de la temperatura del plasma.  $\lambda$ : Longitud de onda,  $A_k$ : Probabilidad de transición,  $E_k$ : Energía del nivel superior de la transición,  $g_k$ : degeneración del nivel superior de la transición.

Muchas de las líneas observadas son superposiciones de varias líneas, ya sea de la misma especie iónica o de especies diferentes; sin embargo, fue posible resolver líneas únicas, las cuáles fueron empleadas para hacer los cálculos para obtener la temperatura del plasma. También, de acuerdo a la distancia al blanco B2 de observación, las líneas útiles fueron variando.

Por ejemplo, para encontrar la temperatura a 3 mm de B2, fue posible emplear líneas de C III (carbono dos veces ionizado), transiciones que a 10 mm de ese blanco, eran prácticamente inútiles. Esto fue debido a la recombinación existente en la pluma, lo cual dio como resultado una relación señal sobre ruido muy pequeña. La Tabla 4.1 muestra las transiciones empleadas para el cálculo de la temperatura y la densidad electrónica del plasma, así como sus parámetros importantes.<sup>5</sup>

Las líneas para diagnosticar el plasma inducido con un pulso láser, tuvieron un comportamiento diferente a aquellas usadas para diagnosticar el plasma inducido con doble pulso a diversos retrasos entre láseres. La Figura 4.6 muestra un ejemplo representativo de tales diferencias, para una región específica. Esta región está centrada en 516.5 nm, y la línea empleada de esta región para los estudios tiene una longitud de onda de 515.11 nm y corresponde a una transición de C II (carbono una vez ionizado). Los espectros de emisión mostrados corresponden tanto al experimento de un solo pulso, como al de doble pulso con un tiempo de retraso de 2  $\mu\text{s}$  entre láseres.



**FIGURA 4.6.** Evolución temporal del espectro de emisión del plasma de ablación de grafito inducido con uno y doble pulso láser con un tiempo de retraso de  $2 \mu\text{s}$  entre pulsos. Los espectros fueron captados a diferentes distancias del blanco del láser de KrF en la dirección normal a éste. **A.** Un pulso a 3 mm, **B.** Doble pulso a 3 mm, **C.** Un pulso a 10 mm, **D.** Doble pulso a 10 mm.

Asimismo, se muestran estos espectros captados a las distancias de 3 y 10 mm de la superficie del blanco del láser de KrF (B2). Las Figuras 4.6-A y 4.6-B muestran el espectro de emisión del plasma de ablación de grafito captado a 3 mm del blanco B2 para un pulso y doble pulso con  $\tau = 2 \mu\text{s}$  respectivamente.

En el espectro de emisión del plasma inducido con doble pulso láser, se observa una pequeña intensificación de las líneas, en comparación con las que se observan en el plasma inducido con un solo pulso láser. También existe un pequeño retraso en el tiempo en que se alcanza el máximo de intensidad de las líneas de emisión; así, para la Fig. 4.6-A este máximo, tiene un valor de 20,700 U.A. para la línea 515.11 nm, el cual se alcanza

en  $t = 80$  (10) ns. Por otro lado, para la Fig. 4.6-B, el máximo tiene un valor de 35,700 U.A. en la misma transición y para el mismo tiempo. Estos resultados muestran que la intensidad de la línea tuvo un aumento del 60% aproximadamente. Esto permite que el tiempo de vida, al menos de esta transición en particular, se incremente hasta  $t = 240$  (10) ns, siendo que, en el espectro generado por un solo pulso, la misma transición existe hasta  $t = 200$  (10) ns. En general, para todas las transiciones empleadas (Ver Tabla 4.1), ocurre lo mismo.

Los espectros de emisión captados a 10 mm del blanco B2 (Fig. 4.6-C y 4.6-D) las diferencias son aún más importantes. Es natural pensar que las líneas de emisión aparecerán a un tiempo posterior al que aparecen cuando la luz se capta a una distancia más cercana; así, a partir de  $t = 120$  (20) ns la transición correspondiente a la longitud de onda  $\lambda = 515.11$  nm se hace visible tanto en el espectro de emisión del plasma inducido con un pulso, como en la configuración de doble pulso. En ambos casos la intensidad inicial es mucho menor a la obtenida en  $x = 3$  mm. Esto es porque los iones, en su recorrido hasta  $x = 10$  mm, han sufrido recombinaciones con los electrones presentes en el plasma. Sin embargo, se encuentran diferencias entre ambos experimentos, cuando se obtiene el tiempo en el que el máximo de intensidad es alcanzado. Así, para el experimento de un solo pulso, este máximo es obtenido a  $t = 280$  (20) ns, mientras que, para  $\tau = 2$   $\mu$ s el tiempo en que se logra el máximo de intensidad es  $t = 480$  (20) ns. En base a estos resultados, la disminución de la energía cinética que sufren las partículas en el plasma de ablación inducido con doble pulso con  $\tau = 2$   $\mu$ s es evidente.

Asimismo, si se comparan las intensidades de las Figs. 4.6-C y 4.6-D, se observa una gran intensificación de las líneas de emisión en el espectro generado con doble pulso láser, con respecto al que es inducido con un solo pulso. Es decir, existe un aumento en la densidad de iones o, lo que es lo mismo, un aumento en la densidad electrónica del plasma. Estos resultados se verán cuantitativamente más adelante (Sección 4.2.3).

#### 4.2.2. Determinación de la Temperatura

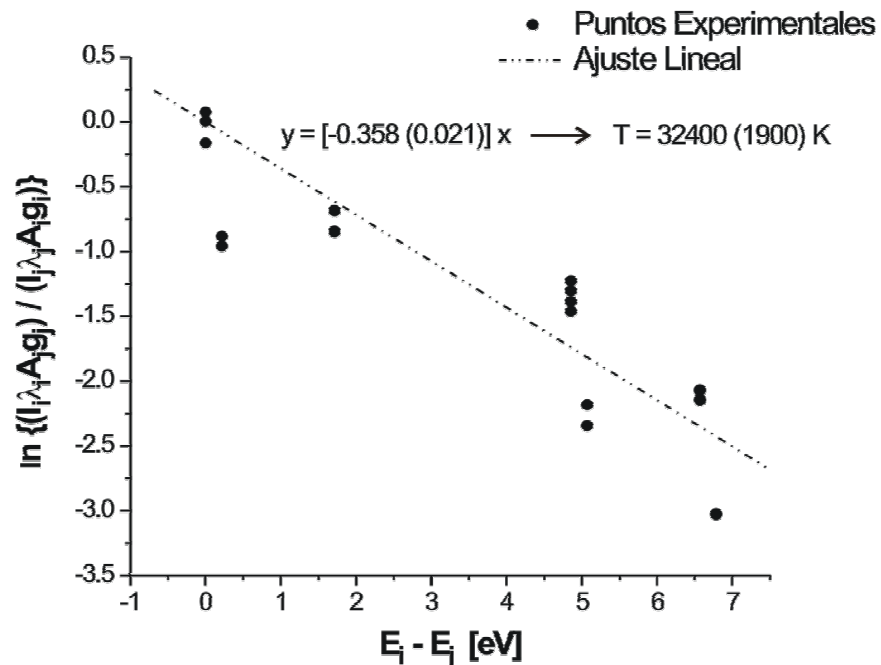
Uno de los métodos para calcular la temperatura de un plasma en ETL y ópticamente delgado, está basado en encontrar ésta a partir de la distribución de Boltzmann que tienen las especies iónicas en dicho plasma (Ver Sección 2.1.1.).



Combinando las Ecs. (2.14) y (2.26) se obtiene una ecuación para la temperatura del plasma, si los demás términos son conocidos:

$$-\frac{E_1 - E_2}{kT} = \ln \left[ \frac{I_1 \lambda_1 A_2 g_2}{I_2 \lambda_2 A_1 g_1} \right], \quad (4.2)$$

donde  $E_i$  es la energía del nivel superior  $I_i$  la intensidad,  $\lambda_i$  la longitud de onda,  $A_i$  la probabilidad de transición,  $g_i$  la degeneración del nivel superior,  $T$  la Temperatura y  $k$  la constante de Boltzmann. Los subíndices se refieren a dos transiciones diferentes. La Ecuación (4.2) es una relación lineal para la temperatura, por lo que haciendo un gráfico con estos parámetros, llamado *Gráfico de Boltzmann*, se obtiene la temperatura del plasma. El procedimiento para obtener la intensidad de la línea se explicó en la Sección 3.3.4. Entonces, cada punto en el gráfico de Boltzmann es el resultado de una comparación entre un par de líneas diferente cada vez; así, para obtener un cálculo confiable de la temperatura se emplearon todos los pares posibles de las transiciones listadas en la Tabla 4.1. Un ejemplo de estos gráficos se muestra en la Fig. 4.7, el cual corresponde a un tiempo de 100 ns a una distancia del blanco B2 de 3 mm. El espectro de emisión proviene del plasma de ablación inducido con un pulso láser.



**FIGURA 4.7.** Gráfico de Boltzmann para el cálculo de la temperatura del plasma de ablación de grafito. Este ejemplo es el gráfico obtenido para un tiempo de 100 ns después del inicio del plasma inducido con un solo pulso, a una distancia de 3 mm de la superficie del blanco B2.

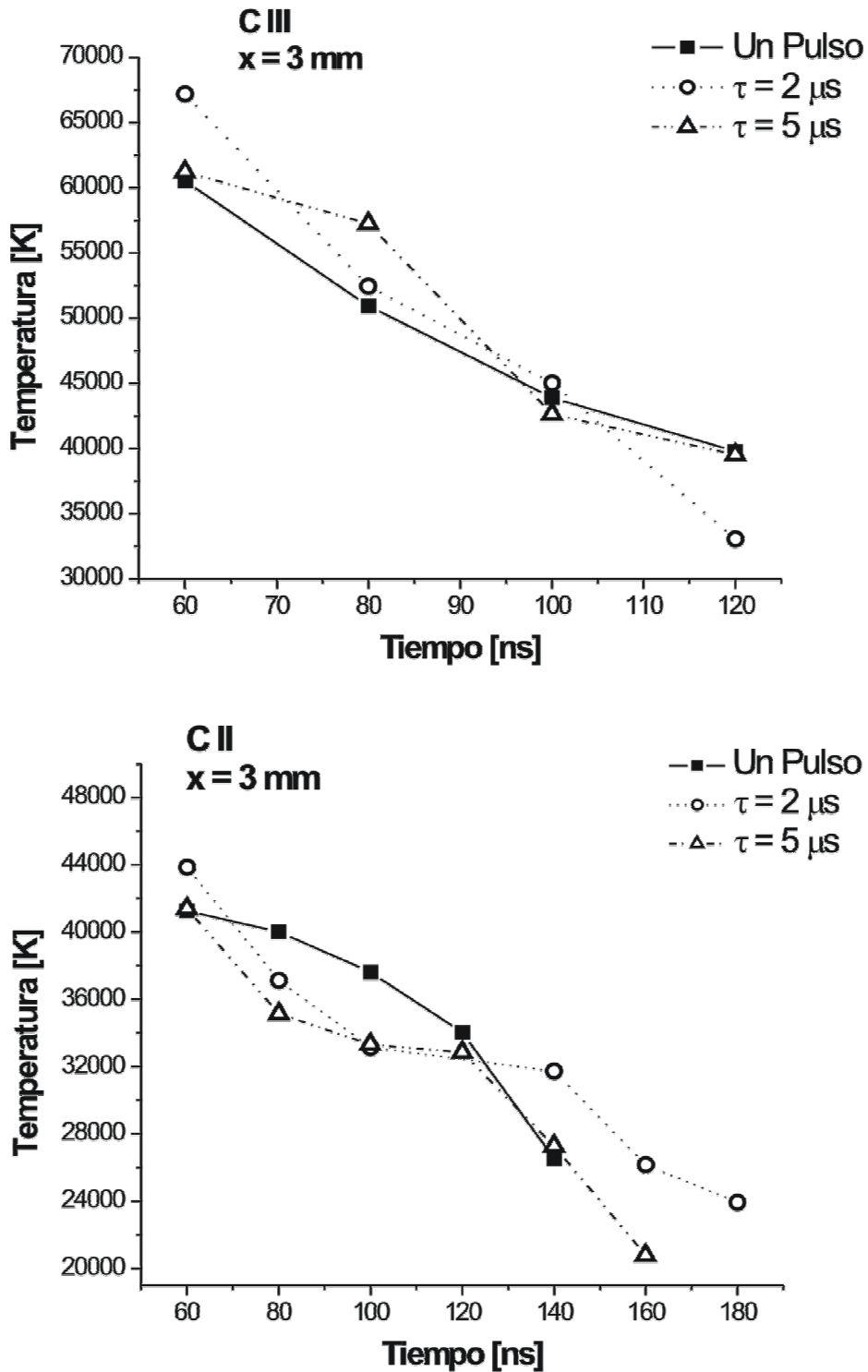
La temperatura del plasma a un tiempo dado se obtiene directamente de la pendiente de la recta generada en el ajuste lineal dada por:

$$m(t) = -\frac{1}{kT(t)}. \quad (4.3)$$

Conforme transcurre el tiempo algunas transiciones van desapareciendo y, por consiguiente, la cantidad de puntos sobre el gráfico de Boltzmann. Este hecho ocasiona que para tiempos suficientemente grandes, a partir del inicio del plasma inducido por el segundo pulso, el cálculo de la temperatura no sea confiable.

La incertidumbre en el cálculo de la temperatura tiene diversos orígenes. En primer lugar, cada uno de los parámetros obtenidos de las tablas del NIST:<sup>5</sup> Probabilidad de transición y Energía del nivel superior, tienen una incertidumbre de entre 10 y 20% debido a las aproximaciones empleadas en los cálculos numéricos para obtener estos valores. En segundo lugar, existe una incertidumbre en el ajuste del perfil Lorentziano a las líneas de emisión, sin embargo, este error es menor al 2%. Finalmente, existe un error en el ajuste lineal realizado en los gráficos de Boltzmann (Ver Fig. 4.7), el cual tiene un máximo del 10%. En suma, las contribuciones importantes a la incertidumbre del valor de la temperatura, provienen de los parámetros consultados en tablas y del ajuste lineal en los gráficos de Boltzmann. Sin embargo, para tener una mejor claridad en la presentación de los resultados, se omitirán las barras de error.

La Figura 4.8 muestra la evolución temporal de la temperatura electrónica del plasma a una distancia de 3 mm de la superficie del blanco del láser de KrF. Ésta es una comparación entre el experimento de un solo pulso con el de doble pulso, con un tiempo de retraso entre láseres de 2 y 5  $\mu$ s. A esta distancia del blanco B2 fue posible calcular la temperatura con dos especies iónicas diferentes, C III (Ver Fig. 4.8-A) y C II (Ver Fig. 4.8-B). Las líneas de emisión de ambas especies se definen al mismo tiempo ( $t = 60$  ns); tiempos anteriores sólo muestran la radiación Brehmsstrahlung, debida a los electrones en movimiento. El tiempo de emisión del C III es menor que el del C II ya que, el primero tiene una mayor probabilidad de recombinarse con los electrones libres presentes en el plasma.



**FIGURA 4.8.** Evolución temporal de la temperatura electrónica del plasma de ablación de grafito inducido con uno y doble pulso láser con tiempos de retraso entre ellos de 2 y 5  $\mu\text{s}$ . La distancia de observación es a 3 mm de la superficie del blanco del láser de KrF. **A.** Evolución obtenida con iones de C III. **B.** Evolución obtenida con iones de C II.

La evolución temporal de la temperatura muestra que ésta es monótonamente decreciente, debido a la cercanía del punto de medición a la superficie del blanco B2. Dentro del error experimental, el cual es de un 20-30% aproximadamente, no se encontraron diferencias en los valores de la temperatura para los tres experimentos expuestos en la Fig. 4.8. El valor máximo de ésta  $\sim 65 (13) \times 10^3$  K y  $\sim 43 (9) \times 10^3$  K para los cálculos realizados con los iones de C III y C II respectivamente. Los valores de la temperatura calculados con ambos iones presentan discrepancias para un mismo tiempo, desde un 35% en  $t = 60$  ns hasta un 20% en  $t = 100$  ns. Esto se puede atribuir a que el plasma no es ópticamente delgado para estos tiempos, entonces existe una fuerte autoabsorción en el mismo; por lo que, la intensidad observada, no es la intensidad real de la transición.

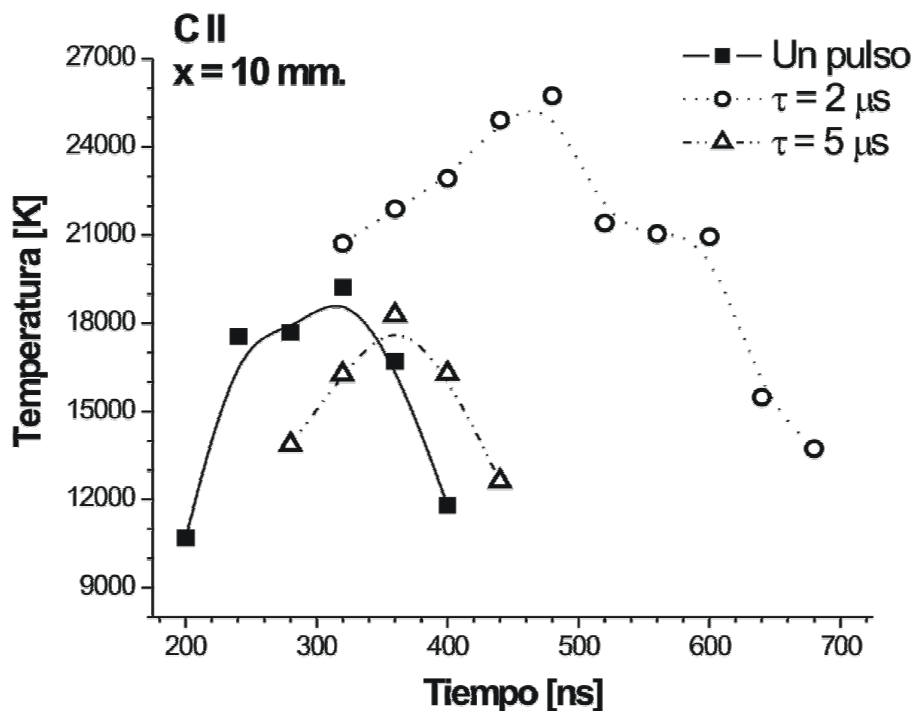
La condición de que el plasma sea ópticamente delgado se obtiene haciendo un cociente para dos transiciones diferentes de la Ec. (2.26). Si se cumple esta condición, el cociente debe tener el mismo valor en ambos lados de la igualdad. Para  $t < 100$  ns, la diferencia de éstos es del 60%, entonces, para estos tiempos el plasma no es ópticamente delgado. Sin embargo, para  $t \geq 100$  ns, esta diferencia es menor al 15%, por lo tanto, se puede decir que la columna del plasma ya no presenta autoabsorción.

La temperatura decae hasta un valor de  $24 (5) \times 10^3$  K para  $t = 180$  ns, en el plasma inducido con doble pulso láser para  $\tau = 2 \mu\text{s}$ . A tiempos mayores no es posible encontrar un valor de la temperatura debido a que, no se pueden observar muchas de las transiciones en el espectro de emisión, o la relación señal sobre ruido es muy pequeña. La evolución de la temperatura, a partir de  $t = 100$  ns, muestra valores semejantes a experimentos de plasmas de ablación de grafito inducidos con un solo pulso reportados en otros trabajos.<sup>6</sup> Éstos fueron hechos bajo las mismas condiciones de presión y fluencia del láser, así como la distancia al blanco a la que fue adquirido el espectro de emisión.

La Figura 4.9 muestra la evolución temporal de la temperatura electrónica a una distancia de 10 mm del blanco B2. De nueva cuenta, se realiza una comparación de los valores de la temperatura encontrados para los experimentos de uno y doble pulso con tiempo de retraso entre láseres de 2 y 5  $\mu\text{s}$ . A esta distancia, el cálculo de la temperatura mediante la distribución de Boltzmann de las especies presentes en la pluma, sólo pudo

realizarse con iones de C II. La razón es que las transiciones útiles de C III prácticamente han desaparecido, debido a la recombinación existente en el plasma.

A 10 mm del blanco del láser de KrF los efectos de la interacción entre las dos plumas generadas por el doble pulso se hacen evidentes. Los valores de la temperatura, en los tres experimentos mostrados en la Fig. 4.9, van aumentando hasta alcanzar un máximo y, posteriormente, decrecen. Ahora bien, el tiempo en el que se alcanzan estos máximos es diferente para cada experimento, lo cual indica que la parte más caliente de la pluma se desplaza a diferentes velocidades. El tiempo de arribo de la parte más caliente de la pluma aumenta en un 50% en el experimento de doble pulso con  $\tau = 2 \mu\text{s}$ , con respecto al experimento de un pulso. Comparando el experimento de doble pulso con  $\tau = 5 \mu\text{s}$  con el de un pulso, se tiene que este tiempo únicamente aumentó en 40 ns.



**FIGURA 4.9.** Evolución temporal de la temperatura electrónica del plasma de ablación de grafito inducido con uno y doble pulso láser con tiempos de retraso entre ellos de 2 y 5  $\mu\text{s}$ . La distancia de observación es a 10 mm de la superficie del blanco del láser de KrF.

La temperatura de la pluma generada con doble pulso con  $\tau = 5 \mu\text{s}$  tiene, dentro del error experimental, la misma temperatura que el plasma inducido con un pulso láser. En estos experimentos se alcanza un máximo de  $\sim 18 (2) \times 10^3 \text{ K}$  con  $t = 360 \text{ ns}$  para el doble pulso y  $t = 320 \text{ ns}$  para el plasma inducido por un pulso. Por otro lado, el máximo de temperatura para el plasma inducido con doble pulso láser con un retraso entre pulsos de  $2 \mu\text{s}$ , alcanza un valor de  $26 (4) \times 10^3 \text{ K}$  con  $t = 480 \text{ ns}$ ; es decir, la temperatura aumenta en un 50% con respecto a la del plasma inducido por un solo láser.

Ahora bien, la intensificación de las líneas de emisión en el plasma inducido con dos pulsos láser con un tiempo de retraso entre ellos de  $2 \mu\text{s}$  (ver Figs. 4.6 C y 4.6 D), permite obtener un valor de la temperatura del mismo hasta  $t = 680 \text{ ns}$ , el cual es comparable al que se obtiene en el plasma inducido con un pulso láser, alcanzando valores de  $\sim 13 (2)$  y  $12 (2) \times 10^3 \text{ K}$  respectivamente. Sin embargo, la tasa de enfriamiento para el primero es menor que para el segundo, debido a la disminución de la energía cinética de las partículas de una de las plumas. Esto provoca que la parte más fría del plasma en la configuración de doble pulso, invierta un mayor tiempo en llegar al punto de observación.

Si se comparan los resultados de las Figs. 4.8 y 4.9, se puede observar, como era de esperarse, una disminución de la temperatura de los plasmas. Asimismo, se puede decir que la afectación en los valores de la temperatura es un proceso acumulativo con la distancia. Así, para  $x = 3 \text{ mm}$  estos valores son semejantes para los tres experimentos, mientras que para  $x = 10 \text{ mm}$  ya existen notables diferencias. Lamentablemente mediante esta técnica de diagnóstico no fue posible analizar a distancias más alejadas del blanco del láser de KrF, debido a que la relación señal sobre ruido de las líneas de emisión útiles para estos cálculos es muy pequeña.

#### 4.2.3. Determinación de la Densidad Electrónica

Para determinar la densidad electrónica, el mecanismo dominante para el ensanchamiento de las líneas de emisión, debe ser el efecto Stark. El ensanchamiento natural es del orden de  $10^{-8} \text{ nm}$ , el resonante es de  $10^{-9} \text{ nm}$ , el Van der Waals es de  $10^{-4} \text{ nm}$  y el Doppler es de  $10^{-2} \text{ nm}$ . Estas estimaciones<sup>7</sup> representan la cota superior para cada uno de los mecanismos de ensanchamiento, por lo tanto, el ensanchamiento Stark

es al menos un orden de magnitud mayor que cualquiera de los otros efectos, siendo éste del orden de  $10^{-1}$  nm.

Como el ensanchamiento Stark es el dominante para el ensanchamiento de las líneas de emisión, entonces el ancho a la mitad del máximo (FWHM) de la línea está en función de la densidad electrónica del plasma (Ver Sección 2.1.3.1). Así, para encontrar la evolución temporal de la densidad electrónica del plasma, basta resolver la Ec. (2.37) de manera numérica para  $N_e$ , para cada tiempo, la cual está dada por:

$$\Delta\lambda_{1/2} = 2W\left(\frac{N_e}{10^{16}}\right) + 3.5A\left(\frac{N_e}{10^{16}}\right)^{1/4} \left[1 - 1.2N_D^{-1/3}\right] W\left(\frac{N_e}{10^{16}}\right). \quad (4.4)$$

Los parámetros de impacto iónico y electrónico,  $A$  y  $W$  respectivamente, dependen de la temperatura del plasma. Cada especie iónica tiene un valor específico, así para calcular la densidad electrónica del plasma de ablación, se emplearon las transiciones de C II correspondientes a las longitudes de onda: 657.8, 658.2, 723.1 y 723.6 nm. La Tabla 4.2 contiene los valores de  $W$  y  $A$  para estas transiciones.<sup>8</sup> No se utilizó una mayor cantidad de líneas debido a que no fue posible encontrar sus parámetros en la literatura. Con cada una de estas transiciones se hizo un cálculo de la densidad electrónica y, posteriormente, se obtuvo un promedio de éstas.

	Transiciones de C II			
	657.8 nm 658.2 nm		723.1 nm 723.6 nm	
	W	A	W	A
Temperatura [K]				
2,500	0.00626	0.029	0.00354	0.01
5,000	0.00823	0.024	0.00623	0.006
10,000	0.0116	0.018	0.0103	0.004
20,000	0.0162	0.014	0.0156	0.003
40,000	0.0209	0.012	0.0211	0.003
80,000	0.0241	0.011	0.0255	0.002

**TABLA 4.2.** Parámetros de ensanchamiento Stark para los dobletes 657.8- 658.2 nm y 723.1- 723.6 nm correspondientes a transiciones del C II.  $W$ : Parámetro de Impacto Electrónico,  $A$ : Parámetro de Impacto Iónico.

Por otro lado, el arreglo experimental también produce un ensanchamiento instrumental de las líneas de 0.02 nm con un perfil lorentziano. Entonces el perfil de las líneas de emisión es una convolución del perfil que se debe al efecto Stark así como el instrumental, siendo los otros mecanismos de ensanchamiento despreciables. Esta convolución resulta en otro perfil lorentziano, por lo que, para encontrar el valor del ensanchamiento Stark, se emplea la Ec. (3.5):

$$\Delta\lambda_S = \Delta\lambda_{OBS} - \Delta\lambda_I, \quad (4.5)$$

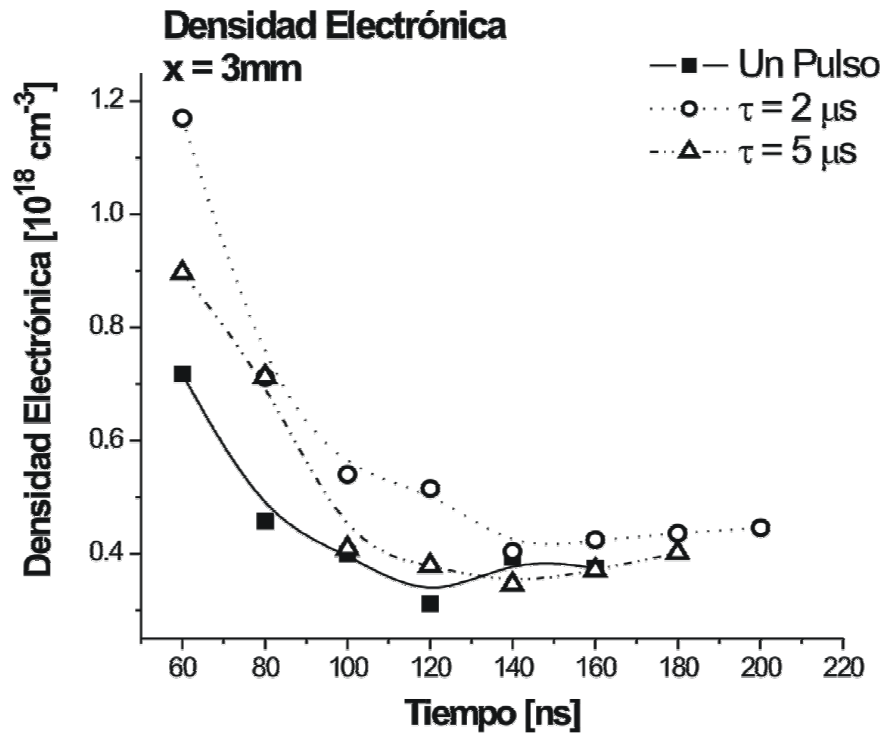
donde  $\Delta\lambda_S$ : Ensanchamiento por efecto Stark,  $\Delta\lambda_{OBS}$ : Ensanchamiento medido en las líneas de emisión,  $\Delta\lambda_I$ : Ensanchamiento instrumental.

Ahora bien, la incertidumbre asociada al cálculo de la densidad electrónica para cada tiempo tiene principalmente dos fuentes: En primer lugar, la Ec. (4.4) es una aproximación al FWHM de la línea, por lo que se tiene un error sistemático del 20 al 30% (Ver Sección 2.1.3.1). Por otro lado, dado que cada punto graficado proviene de un promedio, el error asociado es la desviación estándar del mismo, siendo el valor máximo de éste del 10%. Dado que la primera fuente de error es sistemática, las incertidumbres reportadas en estos cálculos provienen únicamente de la desviación estándar del promedio. Sin embargo, para una mayor claridad en la exposición de los resultados, las barras de error han sido omitidas en los gráficos.

La Figura 4.10 muestra la evolución temporal de la densidad electrónica del plasma a una distancia de 3 mm de la superficie del blanco del láser de KrF. Esta es una comparación entre el experimento de un solo pulso con el de doble pulso, con un tiempo de retraso entre láseres de 2 y 5  $\mu$ s. Debido a que las líneas de emisión se definen completamente a partir de  $t = 60$  ns, éste fue el tiempo inicial para el cálculo de la densidad electrónica del plasma en los tres experimentos expuestos en la Fig. 4.10.

La evolución temporal de la densidad electrónica muestra que ésta siempre es decreciente, esto es debido a la cercanía del punto de medición a la superficie del blanco B2. No se pudo observar la parte creciente de la gráfica, a causa de que para  $t < 60$  ns, la radiación Brehmsstrahlung es la única observable a estos tiempos.





**FIGURA 4.10.** Evolución temporal de la densidad electrónica del plasma de ablación de grafito inducido con uno y doble pulso con un tiempo de retraso entre láseres de 2 y 5  $\mu\text{s}$ . La distancia de observación es a 3 mm de la superficie del blanco del láser de KrF.

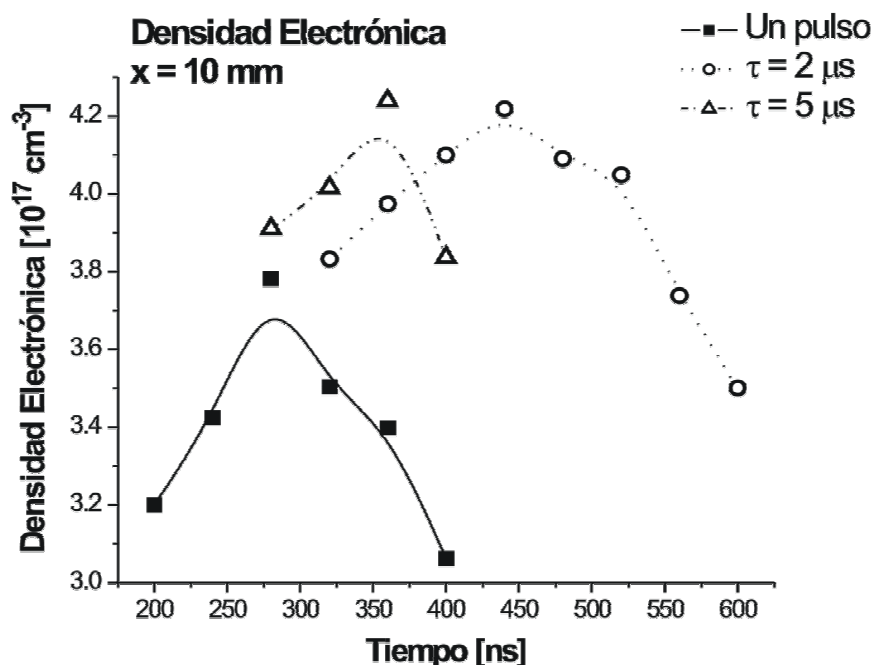
A diferencia de los valores iniciales de la temperatura electrónica (Ver Fig. 4.8), la densidad electrónica inicial cambia significativamente de acuerdo a la configuración utilizada. Así, para el plasma inducido con doble pulso con un tiempo de retraso entre láseres de 2  $\mu\text{s}$ ,  $N_e = 1.2 (0.1) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , para el de  $\tau = 5 \mu\text{s}$ ,  $N_e = 9.0 (0.8) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Finalmente, la densidad electrónica del plasma inducido con un pulso láser es  $N_e = 7.2 (1.0) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Estos valores de la densidad electrónica muestran que el plasma inducido con doble pulso con  $\tau = 2 \mu\text{s}$  es un 40% más denso con respecto al plasma inducido con un pulso. Esto implica que existe una mayor densidad de especies iónicas en el primer plasma, con respecto al segundo.

A tiempos posteriores, conforme las plumas se van expandiendo, y la zona más densa se va alejando de la superficie del blanco B2, las densidades electrónicas se igualan; así, para  $t = 160 \text{ ns}$  éstas tienen un valor de  $3.7 (0.4) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . La

intensificación de las líneas de emisión debido a la interacción entre los plasmas inducidos por el doble pulso, permite obtener valores de la densidad a  $t > 160$  ns.

A 10 mm del blanco del láser de KrF los efectos de la interacción entre las dos plumas generadas por el doble pulso se hacen evidentes para todo tiempo. Los valores de la densidad electrónica, en los tres experimentos mostrados en la Fig. 4.11, van aumentando hasta alcanzar un máximo y, posteriormente, decrecen. El tiempo en el que se alcanzan estos máximos es diferente para cada experimento, y coincide, dentro de un intervalo de 40 ns, con el tiempo en el que se alcanza el máximo de temperatura (Ver Fig. 4.9).

La densidad electrónica del plasma inducido con doble pulso, con los dos tiempos de retraso expuestos, es similar dentro del error experimental. La discrepancia radica en el tiempo en que se alcanzan estos valores; así, para el experimento con  $\tau = 5 \mu\text{s}$  el máximo se alcanza para  $t = 360$  ns, mientras que, para  $\tau = 2 \mu\text{s}$ , este tiempo es  $t = 440$  ns.



**FIGURA 4.11.** Evolución temporal de la densidad electrónica del plasma de ablación de grafito inducido con uno y doble pulso con un tiempo de retraso entre láseres de 2 y 5  $\mu\text{s}$ . La distancia de observación es a 10 mm de la superficie del blanco del láser de KrF.

El valor de la densidad a estos tiempos, en ambos experimentos es  $N_e = 4.2 (0.2) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Ahora bien, el máximo de densidad en la pluma generada por un pulso láser se alcanza para  $t = 280 \text{ ns}$  con un valor de  $N_e = 3.8 (0.3) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

Los resultados anteriores indican que, para el tiempo en que se alcanza cada uno de los máximos, las plumas generadas por el doble pulso láser tienen una densidad de iones un 10% mayor, con respecto a la densidad que tiene el plasma inducido por un pulso láser. Además, la tasa de decaimiento de la densidad electrónica es aproximadamente la misma en los tres experimentos expuestos en la Fig. 4.11.

Los valores de la temperatura y densidad electrónica encontrados en el intervalo de distancias estudiado mediante esta técnica de diagnóstico cumplen, para todo tiempo, la Ec. (2.15). Es decir, el plasma se encuentra en equilibrio termodinámico local, por lo tanto, los resultados obtenidos son válidos en todo momento.

Al igual que la evolución temporal de la temperatura, la afectación en los valores de la densidad es un proceso acumulativo con la distancia. Esto es, para  $x = 3 \text{ mm}$  la densidad electrónica es similar en los tres experimentos, excepto en los tiempos iniciales; sin embargo, para  $x = 10 \text{ mm}$  la densidad en la pluma inducida por doble pulso, es sensiblemente mayor que la que tiene la generada en la configuración de un pulso láser. Asimismo, la disminución de la energía cinética de las especies del plasma, es notable a distancias mayores a  $3 \text{ mm}$  de la superficie del blanco del láser de KrF. El tiempo máximo de observación de las líneas de emisión del plasma inducido con un pulso láser a  $10 \text{ mm}$  del blanco es de  $400 \text{ ns}$ . Por otro lado, la densidad electrónica del plasma inducido con doble pulso con retraso entre láseres de  $2 \mu\text{s}$  se puede obtener hasta un tiempo de  $600 \text{ ns}$  para esta distancia. Este incremento en el tiempo de observación de las líneas de emisión se debe a la reducción en la energía cinética, por un lado, y a la intensificación de las líneas de emisión, por el otro.

### 4.3. ESTUDIO DE LA DINÁMICA DEL PLASMA

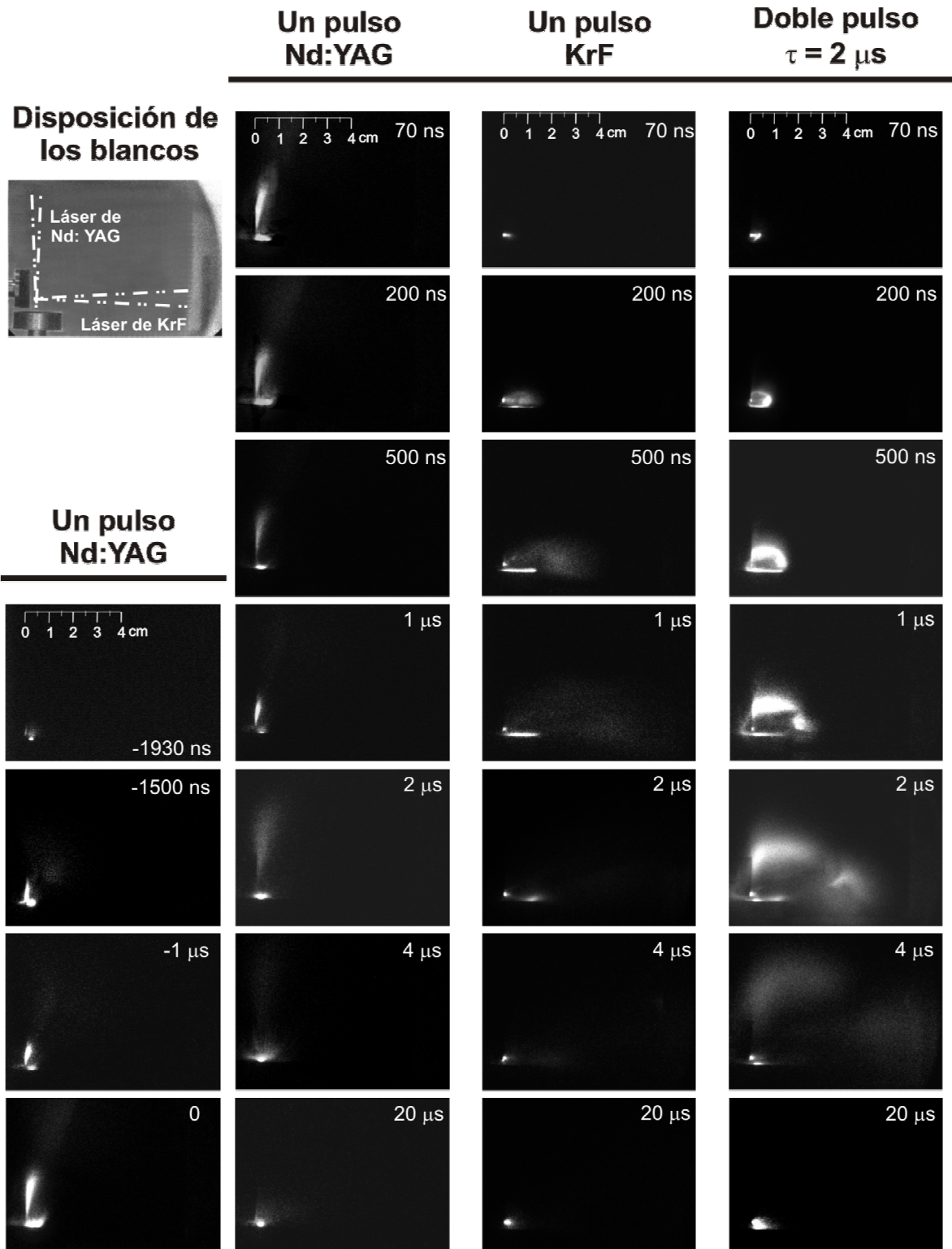
La dinámica de la pluma se evaluó mediante la técnica de Fotografía Rápida, cuyo arreglo experimental se explicó en la Sección 3.3.2. Las imágenes en dos dimensiones de los plasmas inducidos por láser, muestran la expansión tanto de los plasmas producidos

por un solo pulso así como su interacción en la configuración de doble pulso. Mediante esta técnica se observan de manera gráfica los efectos que sufre el segundo plasma al interactuar con el primero, generado previamente sobre un blanco perpendicular. Una desventaja de esta técnica es que sólo permite conocer la evolución de las partículas emisoras de luz contenidas en la pluma, sin embargo, es una buena aproximación para conocer el comportamiento de la dinámica del plasma.

Se analizaron las imágenes, obtenidas con la cámara ICCD, para diferentes tiempos, en el intervalo comprendido entre 100 ns y 40  $\mu$ s, después del inicio del segundo plasma. El retraso entre láseres ( $\tau$ ) fue variado desde cero hasta 40  $\mu$ s. Sin embargo, los efectos más significativos sobre el segundo plasma se observaron en valores de  $\tau$  correspondientes al intervalo entre 2 y 5  $\mu$ s.

En la Figura 4.12 se muestra la evolución temporal en la dinámica de las partículas emisoras de luz, tanto en los plasmas de ablación producidos por un pulso del láser de Nd: YAG (columnas de la izquierda), como por un pulso del láser de KrF (tercera columna) y el doble pulso, cuyo tiempo de retraso entre láseres fue  $\tau = 2 \mu$ s (columna de la derecha). El tiempo cero correspondió al inicio del plasma del segundo pulso, es decir, el plasma generado por el pulso láser de KrF. La distancia entre los puntos focales fue 3.6 mm y las fluencias fueron 60 y 120 J·cm<sup>-2</sup>, para el láser de Nd: YAG y el láser de KrF respectivamente.

La dinámica de los plasmas producidos por un solo pulso son comparables. La emisión inicia en la superficie del blanco y posteriormente se separa en dos componentes: una de las cuales es prácticamente estacionaria y permanece cerca de la superficie del blanco. Esto sucede probablemente como resultado de las colisiones entre las partículas eyectadas en un ambiente de alta presión debido a la expansión inicial de la pluma, que detiene y/o regresa hacia el blanco el material en movimiento.<sup>9-11</sup> Esto último se puede observar claramente en las imágenes obtenidas mediante fotografía de sombras (Ver Fig. 4.1). Por el contrario, la otra componente se expande rápidamente, en la dirección normal al blanco de incidencia correspondiente. Para  $t = 0$ , el plasma inducido por el láser de Nd: YAG ha evolucionado durante 2  $\mu$ s y las partículas eyectadas por la incidencia del pulso láser se han alejado de los blancos, esto debido a la expansión de la pluma. No obstante, han quedado partículas remanentes en la vecindad de éstos.



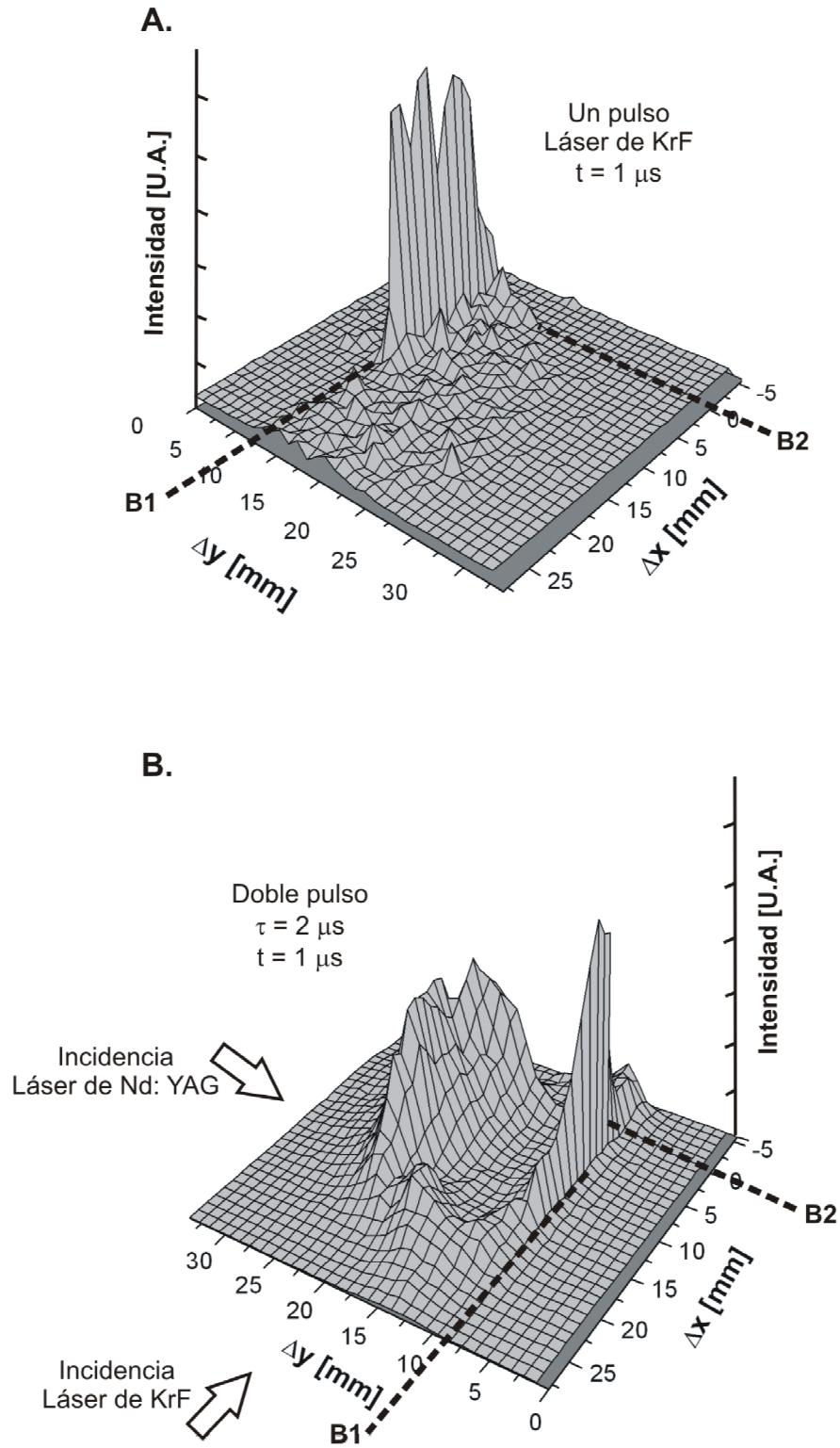
**FIGURA 4.12.** Fotografía rápida de la emisión visible del plasma de ablación de grafito. Los plasmas fueron generados a una presión de  $5 \times 10^{-6}$  Torr y una fluencia de  $60$  y  $120 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  para los láseres de Nd: YAG y KrF, respectivamente. El tiempo se cronometró a partir del inicio del plasma generado por el segundo pulso y está indicado en la esquina superior izquierda de cada fotografía. La distancia se midió a partir de la superficie del blanco del láser de KrF (Blanco B2).

Por otro lado, el primer plasma ha calentado la superficie del blanco del láser de KrF (blanco B2) y, la luz observada en la fotografía correspondiente a  $t = 0$ , se debe a dicho calentamiento y a las partículas más lentas de la pluma. Al igual que el plasma producido por el láser de Nd: YAG, el generado por el pulso láser de KrF se expande rápidamente, al grado que para  $t = 1 \mu\text{s}$ , las partículas emisoras de luz se encuentran a una distancia superior a 3 cm de la superficie del blanco B2. A tiempos posteriores, sólo es posible observar la luz producida por el calentamiento de los blancos y la parte casi estacionaria de la pluma.

El comportamiento de la expansión de la pluma, en la configuración de dos plasmas sincronizados es muy diferente (Ver la columna de la derecha en la Fig. 4.12). Cuando se alcanza un tiempo de  $t = 200 \text{ ns}$ , la pluma se separa, de nueva cuenta, en la componente casi estacionaria en la superficie del blanco y en la pluma que se expande. Sin embargo para  $t \geq 500 \text{ ns}$ , se observa un claro incremento en la emisión respecto al experimento de un solo pulso. En el diagnóstico del plasma realizado por espectroscopía, se observa una intensificación de las líneas de emisión en el experimento de doble pulso, con respecto al de un pulso (Ver Figs. 4.6-C y 4.6-D). Esto último es compatible con lo observado mediante fotografía rápida.

Asimismo, se observa una separación de la pluma que se expande, en donde una fracción se mueve en la dirección normal al blanco B2 y, la otra se mueve aproximadamente a lo largo de la dirección perpendicular. Esto se debe a que las especies del segundo plasma colisionan con las partículas remanentes del primer plasma.

Las especies con el estado de ionización más alto dominan en la dirección normal al blanco,<sup>12</sup> y caen drásticamente fuera de dicha dirección. También, se ha demostrado mediante espectroscopía óptica de emisión de un plasma de ablación de grafito,<sup>2</sup> que las especies iónicas tienen energías cinéticas mayores que la de los neutros. De acuerdo a esto, las especies más rápidas que viajan a lo largo de la dirección normal, es decir las especies más ionizadas, interactúan con las partículas remanentes del primer plasma, perdiendo energía cinética pero manteniendo su trayectoria original. Por otro lado, las partículas más lentas pueden ser deflectadas hacia la dirección del flujo del primer plasma. De ahí la separación de la pluma que se expande en la configuración de doble pulso.



**FIGURA 4.13.** Distribución de intensidad con respecto a la posición de los plasmas de ablación sobre grafito obtenidos de las fotografías de la Fig. 4.12. **A.** Plasma formado por un pulso láser (Láser de KrF), **B.** Experimento de doble pulso con un retraso entre láseres de  $2 \mu\text{s}$ . La posición de los blancos está indicada mediante las líneas punteadas.

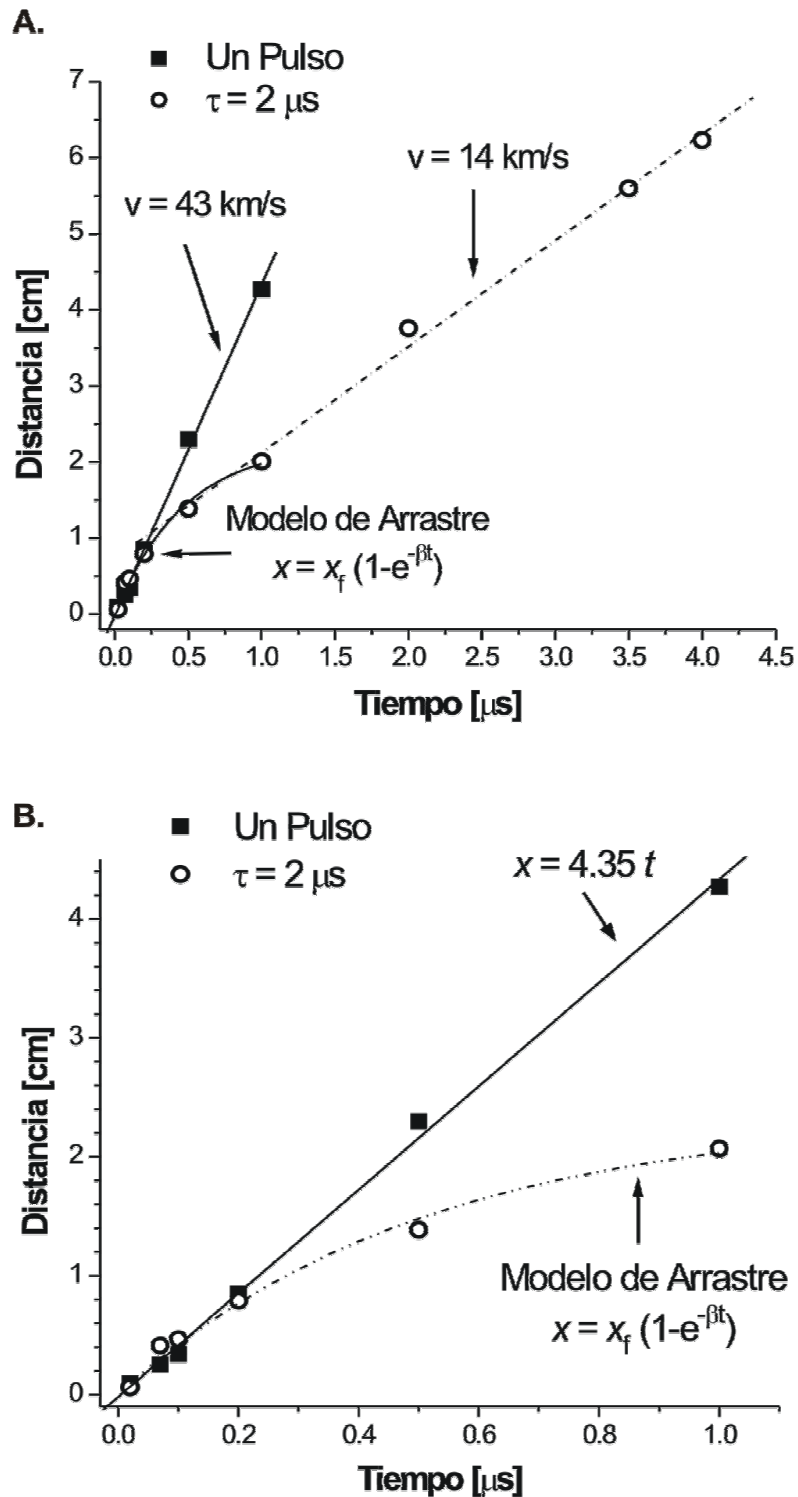
Sin embargo, esta última trayectoria de propagación (eje  $y$ ), no es útil para el crecimiento de películas delgadas. La razón es, que las especies eyectadas por el primer pulso alcanzan el substrato antes que las especies del segundo pulso y cuya energía cinética es posible controlar. Dado que el objetivo final de esta línea de investigación es el crecimiento de películas delgadas, todos los diagnósticos realizados en el presente trabajo, se enfocaron a la porción de la pluma que se mueve en la dirección normal a la superficie del blanco del segundo pulso.

Para obtener la evolución dinámica del plasma  $y$ , por consiguiente, la velocidad de expansión, las fotografías mostradas en la Fig. 4.12 son transformadas en gráficos de intensidad. Se consideró que en la región donde existe una mayor densidad de especies es la región donde existe una mayor emisión de luz (sin considerar para este efecto la región donde están localizados los blancos). Así es posible obtener la evolución temporal de la posición de esas especies y de esta forma, obtener una distribución de velocidades. A partir de esta distribución se obtiene la velocidad más probable del plasma.

La Figura 4.13 muestra un la comparación en 3D de la intensidad de la luz emitida por el plasma de ablación inducido por el láser de KrF únicamente (Fig. 4.13 A) y por la pluma debida a la interacción de dos plasmas de ablación (Fig. 4.13 B). En esta figura se observa que la distribución de intensidades es totalmente diferente para ambos experimentos. Asimismo, es posible observar la emisión debido al calentamiento de los blancos, los cuáles están indicados mediante líneas punteadas.

Distribuciones como las de la Figura 4.13, fueron utilizadas para crear gráficos de distancia contra tiempo de la expansión de los plasmas. La distancia al blanco B2 donde ocurre el máximo de emisión, en función del tiempo, se muestra en la Fig. 4.14. El plasma inducido con el láser de KrF en la configuración de un solo pulso, sigue una expansión libre, es decir se expande a velocidad constante. La regresión lineal para los datos experimentales proporciona una velocidad de  $43.5 (1.0) \text{ km}\cdot\text{s}^{-1}$ . El gráfico de posición vs. tiempo para el experimento de doble pulso muestra que, la velocidad de expansión de la pluma decrece en las primeras etapas ( $t < 1 \mu\text{s}$ ). Para tiempos mayores, la velocidad de expansión permanece constante, mientras que para  $t \leq 1 \mu\text{s}$ , la distribución puede ser ajustada usando el “*modelo de arrastre*”.<sup>13</sup>





**FIGURA 4.14.** Distancia como función del tiempo al blanco B2 de la región donde se encuentra el máximo de intensidad en la emisión de los plasmas de ablación de grafito. Los máximos se obtienen a partir de gráficos como los mostrados en Fig. 4.13. **A.** Distribución hasta la máxima distancia de observación de luz. **B.** Acercamiento hasta  $x = 4$  cm. El tiempo se mide con respecto al inicio del plasma inducido por el láser de KrF.

Dicho modelo, ha sido empleado para describir la dinámica de plasmas inducidos con láser, en presencia de una atmósfera gaseosa a una presión controlada.<sup>14-16</sup> Las especies eyectadas son consideradas como un sistema que sufre una fuerza viscosa, proporcional a su velocidad de expansión, causada por el gas de fondo. En este trabajo, la atmósfera gaseosa sería producida por las partículas remanentes del primer plasma.

Así, la propagación del plasma,  $x$ , como función del tiempo, puede escribirse como:

$$x = x_f [1 - \exp(-\beta t)] \quad (4.6)$$

donde  $x_f = \frac{v_0}{\beta}$ : Distancia de detención (distancia a la cual la pluma llegaría al reposo),  $\beta$ :

Coefficiente de amortiguamiento y  $v_0$ : Velocidad inicial.

La Figura 4.14 B muestra un acercamiento de la distribución para tiempos cortos, con lo que se puede observar más claramente el ajuste con el “*modelo de arrastre*”. Los parámetros obtenidos usando este modelo, para los datos experimentales generados en el experimento de doble pulso con  $\tau = 2 \mu\text{s}$ , fueron  $x_f = 2.37$  (0.19) cm,  $\beta = 1.96$  (0.31)  $\mu\text{s}^{-1}$  y la correspondiente velocidad inicial  $v_0 = 46.45$  (11.07)  $\text{km}\cdot\text{s}^{-1}$ . Para  $x \geq 2$  cm, el gráfico de posición contra tiempo muestra un ajuste lineal, con una velocidad de  $14 \text{ km}\cdot\text{s}^{-1}$ . Esto puede deberse al hecho de que la pluma del segundo plasma abandona la región en la que están presentes las partículas remanentes del primer plasma.

La dinámica del plasma muestra que, en la configuración de doble pulso con retraso entre láseres de  $2 \mu\text{s}$ , ésta se puede ajustar mediante un modelo que considera la colisión de las especies de la pluma con una atmósfera remanente de partículas. Se puede observar (Ver Fig. 4.14 B) que es un efecto acumulativo, y que la pluma gradualmente disminuye su energía cinética conforme aumenta la distancia recorrida a partir de la superficie del blanco. Sin embargo, una vez que la pluma del segundo plasma sale de la zona de influencia del primer plasma, o de sus partículas remanentes, ésta se expande libremente a velocidad constante.

Según el modelo de arrastre, el plasma se expande en un medio con una densidad muy baja. Así, se produce una onda de choque y todas las partículas eyectadas se

propagan detrás de la misma. Esta acumulación de partículas atrás de la onda de choque produce en simultáneo una intensificación de las líneas de emisión, un aumento en la densidad electrónica y en la temperatura, así como una reducción en la velocidad de las especies. Por lo tanto, este modelo explicaría lo observado experimentalmente mediante las técnicas de diagnóstico empleadas en este trabajo.

**REFERENCIAS**

1. R.K. Singh, J. Narayan. *Phys. Rev. B*, **41**, 8843, (1990).
2. C. Sánchez-Aké, H. Sobral, P. Ramos-Alvarez, C. Lemen and M. Villagrán-Muniz. "Ion kinetic energy control in dual-pulsed laser ablation on graphite targets," aceptado para su publicación en *J. Phys.: Conference Series*.
3. C. D. David. *Appl. Phys. Lett.* **11**, 394 (1967).
4. M. Murphy, C. Glasheen, F. A. Moscatelli and T. D. Donnelly. *Phys. Rev. A*, **55**, R2543, (1997).
5. Yu. Ralchenko, F.-C. Jou, D.E. Kelleher, A.E. Kramida, A. Musgrove, J. Reader, W.L. Wiese and K. Olsen. *NIST Atomic Spectra Database*, (version 3.0.2, 2005). [En línea]. Disponible en: <http://physics.nist.gov/asd3>. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
6. S.S. Harilal, C.V. Bindhu, R.C. Isaac, V.P.N. Nampoori and C.P.G. Vallabhan. *J. Appl. Phys.* **82**, 2140 (1997).
7. S. Pellerin, K. Musiol and J. Chapelle, *J. Quant. Radiat. Transfer.* **57**, 377 (1997).
8. H.R. Griem. *Plasma spectroscopy*. (Mc Graw Hill, USA, 1964).
9. R Nelly and B. Braren, *Appl Phys B.* **53**, 160 (1991).
10. R. Nelly, *J. Chem. Phys.* **92**, 5047 (1990).
11. W. Pietsch, *J Appl. Phys.* **79**, 1250 (1996).
12. Thum-Jaeger, B K. Sinha and K P. Rohr, *Phys. Rev. E* **63**, 016405 (2001).
13. D B. Geohegan in: D B. Chrisey, G K. Hubbler (Eds), Pulsed Laser Deposition of Thin Films (Wiley, New York, 1994, pp. 146-156)
14. B. Angleraud, J. Aubreton and A. Catherinot, *Eur. Phys. J. AP.* **5**, 303 (1999).
15. T. Kerdja, S. Abdelli, D. Ghobrini and S. Malek, *J. Appl. Phys.* **80**, 5365 (1996).
16. S S. Harilal, C V. Bindhu, M S. Tillack, F. Najmabadi and A C. Gaeris, *J. Phys D: Appl. Phys.* **35**, 2935 (2002).

## CONCLUSIONES

Los procesos físicos involucrados en la interacción de dos plasmas de ablación perpendiculares inducidos con dos pulsos láser sincronizados es un tema que apenas se está empezando a estudiar. Este trabajo de tesis es un primer acercamiento a esta cuestión. El entendimiento de estos procesos y saber los cambios que sufre el segundo plasma al interactuar con un plasma generado previamente, servirán para optimizar el crecimiento de películas delgadas por medio de ablación de materiales con láseres pulsados (*Pulsed Laser Deposition*, PLD). En particular, para el crecimiento de películas delgadas tipo diamante dado que los plasmas de ablación estudiados en este trabajo fueron inducidos sobre blancos de grafito.

Se hizo un contraste entre, un plasma de ablación inducido con un solo pulso, y los efectos producidos por la interacción con un plasma inducido previamente sobre un blanco perpendicular al primero, de manera sincronizada. Los plasmas inducidos mediante ambas configuraciones fueron estudiados a través de Interferometría de Dos Colores, Espectroscopía Óptica de Emisión y Fotografía Rápida en la dirección normal al blanco del segundo pulso. Estas técnicas de diagnóstico proporcionaron algunas de las características físicas de los plasmas: Densidad electrónica y de neutros, temperatura electrónica y la dinámica de la pluma. Asimismo se obtuvo la evolución en el tiempo de todas éstas.

Mediante Interferometría de Dos Colores se mostró que para las primeras etapas en la evolución del plasma, las densidades electrónica y de neutros en los experimentos de uno y doble pulso son similares. En la configuración de doble pulso, para retrasos entre láseres de entre 2 y 5  $\mu\text{s}$ , el plasma inducido por el segundo pulso hasta la distancia máxima al blanco estudiada (1.5 mm) no ha interactuado con el plasma inducido por el primer pulso, o esta interacción no pudo ser detectada para estas distancias. Con esta técnica de diagnóstico se obtuvo que ambas configuraciones para la generación de los plasmas de ablación alcanzan el máximo de densidad, tanto electrónica como de neutros, al mismo tiempo, para una distancia al blanco específica, además, la evolución temporal de éstas es semejante. El máximo de ambas densidades encontrado fue de  $N_e = 1.5 (0.3) \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  y  $N_0 = 3.0 (0.2) \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Los valores de densidad encontrados para todo tiempo, dentro del error experimental, se conservan en el intervalo de distancias

estudiado. Así, en esta zona de análisis del plasma, el grado de ionización promedio del mismo fue de 5%.

Ahora bien, para poder analizar las propiedades del plasma a distancias mayores al blanco del segundo pulso fue necesario emplear Espectroscopía Óptica de Emisión. Esta técnica de diagnóstico proporcionó la evolución temporal de la temperatura y de la densidad electrónica. El intervalo de distancias estudiado corrió desde 3 hasta 10 mm, debido a que, a distancias menores sólo es posible observar la radiación Brehmsstrahlung del plasma; a distancias mayores, la relación señal sobre ruido de las líneas de emisión es muy pequeña.

Los valores de temperatura del plasma, para una distancia de 3 mm a la superficie del blanco, fueron similares para la configuración de un pulso y para la de doble pulso. Sin embargo, se encontró que para los tiempos iniciales de estudio  $60 \text{ ns} \leq t \leq 100 \text{ ns}$ , las temperaturas encontradas mediante iones de C II difieren con respecto a las halladas con los iones de C III. Esto es, porque para estos tiempos, el plasma de ablación no es ópticamente delgado. Sin embargo para  $t > 100 \text{ ns}$  se obtienen valores correctos de la temperatura, dado que se cumplen las suposiciones realizadas (Plasma en Equilibrio Termodinámico Local y Ópticamente Delgado) para realizar estos cálculos. La temperatura del plasma, para ambas configuraciones, va de  $34 (3) \times 10^3 \text{ K}$  a  $t = 120 \text{ ns}$ , hasta  $24 (4) \times 10^3 \text{ K}$  a  $t = 160 \text{ ns}$ . En el caso de la densidad electrónica, a partir de  $t = 120 \text{ ns}$  mantiene un valor aproximadamente constante de  $4.0 (0.5) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

La afectación en los valores de la temperatura y la densidad electrónica del plasma en la configuración de doble pulso, con respecto a la configuración de un pulso, es un proceso acumulativo con la distancia. Así, para una distancia de 10 mm al blanco del segundo pulso, para un retraso entre láseres de  $2 \mu\text{s}$ , se tiene un incremento en el valor máximo de la temperatura del plasma del 50% con respecto al máximo alcanzado en la configuración de un pulso láser. Los valores obtenidos fueron de  $26 (4) \times 10^3$  y  $18 (2) \times 10^3 \text{ K}$  respectivamente. Se observó que la zona más caliente de la pluma alcanza el punto de observación a diferentes tiempos, de acuerdo a la configuración que se esté estudiando. Así, para  $\tau = 2 \mu\text{s}$ , este tiempo es de 480 ns, lo cual fue un incremento en un 50% con respecto al tiempo que se invirtió en la configuración de un pulso ( $t = 320 \text{ ns}$ ). De la misma forma, los valores de la densidad electrónica también presentaron variaciones,

dependiendo de la configuración con la que se indujo el plasma. Para el plasma inducido con doble pulso y retraso entre láseres de 2  $\mu\text{s}$ , la densidad electrónica se incrementa en un 10% con respecto a los valores encontrados en el plasma inducido con un pulso láser, siendo sus valores máximos de 4.2 (0.2) y 3.8 (0.3)  $\times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  respectivamente. Los tiempos en que se alcanzan estos máximos, coinciden con aquellos en los que se alcanzan los máximos de temperatura.

Finalmente, el estudio de la dinámica del plasma mediante las imágenes obtenidas con Fotografía Rápida, para el retraso entre láseres fijo de 2  $\mu\text{s}$ , revela una separación de la segunda pluma en tres diferentes regiones. Esto puede deberse a colisiones entre especies eyectadas del blanco del segundo pulso a diferentes velocidades, y las partículas remanentes de la pluma producida por el primer pulso. La parte del segundo plasma que se expande en la dirección normal a la superficie del blanco mostró dos diferentes comportamientos como función de la distancia al blanco. A distancias hasta de 2 cm, la dinámica del plasma fue determinada en el marco del *modelo de arrastre*, el cual explica la expansión de plasmas inducidos con láser en gases a una atmósfera controlada. A distancias mayores,  $x > 2 \text{ cm}$ , la evolución del plasma fue similar a una expansión libre, con una velocidad de 14  $\text{km}\cdot\text{s}^{-1}$ . Este cambio en el comportamiento dinámico del plasma puede deberse a la salida de la pluma de la zona de influencia de las partículas remanentes del primer plasma. La velocidad inicial del plasma inducido bajo la configuración de doble pulso fue de  $v_0 = 46.45 (11.07) \text{ km}\cdot\text{s}^{-1}$ , la cual coincide, dentro del error experimental, con la velocidad de expansión del plasma inducido con un pulso ( $v = 43.5 (1.0) \text{ km}\cdot\text{s}^{-1}$ ), la cual corresponde a una expansión libre.

Todos los resultados encontrados en este trabajo indican que los cambios observados en las propiedades físicas del segundo plasma, al interactuar con las partículas remanentes de una pluma inducida previamente sobre un blanco perpendicular, son acumulativos con la distancia. Así, en las regiones cercanas al blanco del segundo pulso (hasta 5 mm medidos en la dirección normal) no existen cambios mensurables en la densidad electrónica y de neutros, así como en la temperatura del plasma. Esto es razonable, dado que, de acuerdo con el *modelo de arrastre* la energía cinética inicial de la pluma es similar a la que tiene la que es generada por un pulso láser.

Sin embargo, los estudios espectroscópicos realizados a partir de  $x = 3$  mm, muestran una intensificación de las líneas de emisión de las especies iónicas en la configuración de doble pulso con respecto a la intensidad mostrada en la emisión del plasma inducido con un pulso. Éstas pueden deberse a las mismas colisiones que provocan la disminución en la energía cinética de las especies; por tanto, se puede decir que las colisiones inducen una ionización de la pluma, así como un incremento en su temperatura. Los efectos de éstas se hacen mensurables conforme la pluma se aleja de la superficie del blanco. Los cambios en las propiedades físicas de la pluma se observaron para un retraso entre pulsos comprendido en el intervalo de 2 a 5  $\mu\text{s}$ , siendo  $\tau = 2$   $\mu\text{s}$  el retraso entre láseres en el que se observaron con mayor peso los mismos.

Para determinar las características de la pluma inducida en la configuración de doble pulso a distancias al blanco del segundo pulso, mayores a 10 mm, será necesario emplear otras técnicas de diagnóstico, tales como Fluorescencia Inducida por Láser, emplear una sonda de Langmuir para determinar la densidad, etc. Sin embargo, este tema de investigación queda abierto para un trabajo a futuro.



## BIBLIOGRAFÍA

1. S.V. Gaponov, A.A. Gudkov and A.A. Fraerman. *Sov. Phys. Tech. Phys.* **27**, 1130 (1982).
2. S. Witanachchi, K. Ahmed, P. Sakthivel and P. Mukherjee. *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1469 (1995).
3. P. Mukherjee, S. Chen, J.B. Cuff and S. Witanachchi. *J. Appl. Phys.* **91**, 1828 (2002).
4. P. Mukherjee, S. Chen, J.B. Cuff and S. Witanachchi. *J. Appl. Phys.* **91**, 1837 (2002).
5. G. Koren, R.J. Baseman, A. Gupta, M.I. Lutwyche and R.B. Laibowitz. *Appl. Phys. Lett.* **56**, 2144 (1990).
6. E. Camps, L. Escobar-alarcón, E. Haro-Poniatowski and Fernández-Guasti. *Appl. Surf. Sci.* **197-198**, 239 (2002).
7. C. Sánchez Aké, H. Sobral, E. Sterling and M. Villagrán Muniz. *Appl. Phys. A.* **79**, 1345 (2004).
8. C. Sánchez-Aké, H. Sobral, P. Ramos-Alvarez, C. Lemen and M. Villagrán-Muniz. "Ion kinetic energy control in dual-pulsed laser ablation on graphite targets" aceptado para su publicación en *J. Phys.: Conference Series*.
9. X.T. Wang, B.Y. Man, G.T. Wang, Z. Zhao, Y. Liao, B.Z. Xu, Y.Y. Xia, L.M. Mei and X.Y. Hu. *J. Appl. Phys.* **80**, 1783 (1996).
10. L.S.T. Onge, M. Sabsabi and P. Cielo. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry.* **12**, 997 (1997).
11. S. Yalcin, D.R. Crosley, G.P. Smith and G.W. Faris. *Appl. Phys. B.* **68**, 121 (1999).
12. R.G. Root. Laser Induced Plasmas and Applications. Editado por L.J. Radziemsky, D.A. Cramers. (Marcell Dekker, USA, 1989).
13. D. Bäuerle. Laser Processing and Chemistry. 2<sup>nd</sup> edition. (Springer- Verlag, Germany, 1996).
14. D.B. Chrisey, G.K. Hübner. Pulsed Laser Deposition Films. (John Wiley, USA, 1994).
15. E.V. Pechen, S.I. Krsnosvobodsev, G. Kessler, A. Ritcher, M. Panzer, O. Grossman and A. Tereisak, *Phys. Status Solidi A* **131**, 179 (1992).

16. J. Uebbing, J. Brust, W. Sdorra and F. Leis, K. Niemax. *Appl. Spectrosc.* **45**, 1419 (1991).
17. D.N. Stratis, K.L. Eland and S. Michael Angel. *Appl. Spectrosc.* **54**, 1270 (2000).
18. D.N. Stratis, K.L. Eland and S. Michael Angel. *Appl. Spectrosc.* **55**, 1297 (2001).
19. R. Sattmann, V. Sturm and R. Noll. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28**, 2181 (1995).
20. L. St-Onge, M. Sabsabi and P. Cielo. *Spectrochim. Acta Part B.* **53**, 407 (1998).
21. F. Colao, V. Lazic, R. Fantoni and S. Pershin. *Spectrochim. Acta Part B.* **57**, 1167 (2002).
22. M. Corsi, G. Cristoforetti, M. Giuffrida, M. Hidalgo, S. Legnaioli, V. Palleshi, A. Salvetti, E. Tognoni and C. Vallebona. *Spectrochim. Acta Part B.* **59**, 723 (2004).
23. S. Witanachchi, A. M. Miyawa and P. Mukherjee. *Mat. Res. Soc.* **617**, J3.6.1-6 (2000).
24. O. Olea Cardoso. Preparación de Películas Delgadas de Carbono utilizando un Plasma de Microondas tipo ECR. Tesis de Doctorado en Ciencias de Materiales. Facultad de Química, UAEM. (2004).
25. S. Aisenberg and R. Chabot. *J. Appl. Phys.*, **42**, 2953 (1971).
26. H.R. Griem. Plasma spectroscopy. (Mc Graw Hill, USA, 1964)
27. A. Thorne, U. Litzén, S. Johansson. Spectrophysics. (Springer-Verlag, Germany, 1999)
28. H.R. Griem. Spectral Line Broadening by Plasmas. (Academic Press, USA, (1974)
29. H.R. Griem. Principles of Plasma Spectroscopy. (Cambridge University Press, UK, 1997)
30. G. Bekefi. Principles of Laser Plasmas. (John Wiley and Sons, USA, 1976)
31. R.W.P. Mc Whirter. Plasma Diagnostic Techniques. Editado por R.H. Hudleston, S.L. Leonard. (Academic Press, USA, 1965)
32. B.Y. Man. *Appl. Phys. B.* **67**, 241- 245. (1998)
33. M. Born, E. Wolf. Principles of Optics, 6<sup>th</sup> edition (Pergamon Press, UK, 1980)
34. E. Hecht. Óptica, 3<sup>a</sup> edición, trad. R. Dal Col (Addison Wesley Iberoamericana, Madrid, 2000)
35. J.D. Jackson. Classical Electrodynamics, 2<sup>nd</sup> edition (John Wiley and Sons, USA, 1975)
36. M.A. Heald, J.B. Marion. Classical Electromagnetic Radiation, 3<sup>rd</sup> edition (Saunders College Publishing, USA, 1995)

37. G.S. Settles. Schlieren and Shadowgraph Techniques (Springer- Verlag, Germany, 2001)
38. I.H. Hutchinson. Principles of plasma diagnostics, (Cambridge University Press. USA. 1987).
39. C. D. David. *Appl. Phys. Lett.* **11**, 394 (1967).
40. M. Murphy, C. Glasheen, F. A. Moscatelli and T. D. Donnelly. *Phys. Rev. A*, **55**, R2543, (1997).
41. R.K. Singh, J. Narayan. *Phys. Rev. B*, **41**, 8843, (1990).
42. Yu. Ralchenko, F.-C. Jou, D.E. Kelleher, A.E. Kramida, A. Musgrove, J. Reader, W.L. Wiese and K. Olsen. *NIST Atomic Spectra Database*, (version 3.0.2, 2005). [En línea]. Disponible en: <http://physics.nist.gov/asd3>. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
43. S.S. Harilal, C.V. Bindhu, R.C. Isaac, V.P.N. Nampoori and C.P.G. Vallabhan. *J. Appl. Phys.* **82**, 2140 (1997).
44. S. Pellerin, K. Musiol and J. Chappelle, *J. Quant. Radiat. Transfer.* **57**, 377 (1997).
45. R Nelly and B. Braren, *Appl Phys B.* **53**, 160 (1991).
46. R. Nelly, *J. Chem. Phys.* **92**, 5047 (1990).
47. W. Pietsch, *J Appl. Phys.* **79**, 1250 (1996).
48. Thum-Jaeger, B K. Sinha and K P. Rohr, *Phys. Rev. E* **63**, 016405 (2001).
49. B. Angleraud, J. Aubreton and A. Catherinot, *Eur. Phys. J. AP.* **5**, 303 (1999).
50. T. Kerdja, S. Abdelli, D. Ghobrini and S. Malek, *J. Appl. Phys.* **80**, 5365 (1996).
51. S S. Harilal, C V. Bindhu, M S. Tillack, F. Najmabadi and A C. Gaeris, *J. Phys D: Appl. Phys.* **35**, 2935 (2002).