

열적 메커니즘에 의한 펄스레이저 어블레이션 현상의 수치계산

오부국* · 김동식†

Numerical computation of pulsed laser ablation phenomena by thermal mechanisms

Bukuk Oh, Dongsik Kim

Key Words : Ablation(어블레이션), plume(플룸), Knudsen layer, Recondensation(재응축)

Abstract

High-power pulsed laser ablation under atmospheric pressure is studied utilizing numerical and experimental methods with emphasis on recondensation ratio, and the dynamics of the laser induced vapor flow. In the numerical calculation, the temperature pressure, density and vaporization flux on a solid substrate are first obtained by a heat-transfer computation code based on the enthalpy method, and then the plume dynamics is calculated by using a commercial CFD package. To confirm the computation results, the probe beam deflection technique was utilized for measuring the propagation of a laser induced shock wave. Discontinuities of properties and velocity over the Knudsen layer were investigated. Related with the analysis of the jump condition, the effect of the recondensation ratio on the plume dynamics was examined by comparing the pressure, density, and mass fraction of ablated aluminum vapor. To consider the effect of mass transfer between the ablation plume and air, unlike the most previous investigations, the equation of species conservation is simultaneously solved with the Euler equations. Therefore the numerical model computes not only the propagation of the shock front but also the distribution of the aluminum vapor. To our knowledge, this is the first work that employed a commercial CFD code in the calculation of pulsed ablation phenomena.

기호설명			
e	: Specific internal energy [J/kg]	m_{al}	: Atomic mass [kg]
F	: Fluence [J/m ²]	N_A	: Avogadro's number
h	: Enthalpy [J/kg]	P	: Pressure [Pa]
H_{lv}	: Heat of vaporization [J/kg]	R	: Reflectivity
$I(t)$: Temporal laser energy flux [W/m ²]	R_{al}	: Gas constant for aluminum vapor [J/kgK]
j_{ev}	: Evaporation rate [kg/m ² s]	t	: Time [s]
k	: Thermal conductivity [W/mK]	T	: Temperature [K]
k_B	: Boltzmann constant [J/K]	t_l	: Laser pulse duration [s]
L	: Length of aluminum substrate	t_p	: Peak time of laser pulse [s]
		u	: Velocity [m/s]
		u_{int}	: Velocity of the interface [m/s]
		\vec{V}	: Velocity vector with u_r, u_z
		x	: Axis of aluminum in depth direction [m]
		y	: Mass fraction

† 포항공과대학교 기계공학과
E-mail : dskim87@postech.ac.kr
TEL : (054)279-5910 FAX : (054)279-3199

* 포항공과대학교 기계공학과

- z : Vertical axis of flow domain [m]
- α : Absorption coefficient for aluminum [1/m]
- α_p : Absorption coefficient for plasma [1/m]
- β : Recondensation ratio
- Δt : Increment of time for calculation [s]
- γ : Specific heat ratio
- ρ : Density [kg/m^3]

Subscript

- amb: ambient
- air: air
- al: aluminum
- 0: on liquid surface
- 1: at the edge of Knudsen layer

1. 서 론

레이저를 이용한 기술들은 박막제조, 재료처리, 화학공정과 고밀도 에너지, 광통신, 의학 및 생물학적 응용과 같은 많은 곳에 사용 되고 있다. 박막제조, 나노입자 생성 그리고 레이저 머시닝과 같은 기술들은 레이저빔과 금속의 에너지 결합과 어블레이션 플룸 (plume) 의 거동의 특성이 박막의 품질과 나노입자의 크기와 분포를 결정한다[1]. 어블레이션 측정에 있어 가장 널리 쓰이는 방법으로 레이저 조사에 의해 생긴 충격파와 플룸의 전파를 측정하는 것이다. 이러한 측정기법으로 몇 가지가 있는데 광굴절법 (probe beam deflection measurement)[2], fast imaging 그리고 fast photography[3] 가 주로 사용된다. 본 연구는 광굴절법을 통해서 충격파의 전파속도를 측정하였다.

본 연구는 열적 메커니즘에 의한 어블레이션 시뮬레이션을 수행함에 있어 최초로 상용 CFD 패키지 (STAR-CD, version 3.1) 를 사용한다. 또한 많은 연구자들이 유동장을 1 차원으로 해석 하였으나 2 차원 모델을 도입하였다. 또한 증발된 플룸의 거동을 살피기 위해서 플룸과 분위기의 유동을 동시에 계산하였다. 진공의 경우에 있어서 플룸의 거동은 많이 연구되어 왔으나 대기압 하에서 플룸의 거동은 실험과 계산이 수행된 것이 아직은 미흡한 실정이다. 따라서 본 연구에서 알루미늄 시편에 대하여 대기압 조건하에서 어블레이션 실험을 수행하였다.

2. 수치적 모델링

2.1 열전달 및 Knudsen 층 모델링

식(2.1) 에서 처럼 열전도 방정식을 통해서 펄스

레이저에 의한 금속의 온도분포를 구할 수 있다. 기존의 열전도 방정식의 경우 종속변수로서 온도만을 사용하였으나 상변화를 동시에 고려하기 위해서 용융 상태에서도 시스템의 에너지 변화를 나타낼 수 있는 종속변수로 엔탈피를 사용한다[3].

$$\rho \frac{\partial h}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \alpha(1-R)e^{-\alpha x} I(t)$$

$$I(t) = \begin{cases} \frac{2F}{t_l} \frac{t}{t_p} & , 0 \leq t < t_p \\ \frac{2F}{t_l} \frac{t_l - t}{t_l - t_p} & , t_p \leq t \leq t_l \\ 0 & , t > t_l \end{cases} \quad (2.1)$$

B.C. ($x=0$): $k \frac{\partial T}{\partial x} = \rho_0 H_h u_0$

($x=L$): $T(L,t) = 300.0$

I.C. ($t=0$): $T(x,0) = 300.0$

$$x(t)_{\text{int}} = \int_0^t j_{ev} / \rho_0 dt$$

엔탈피는 온도의 함수로서 주어진다. 레이저 빔에 의한 열 생성량은 시간에 따라 에너지 유속이 변하게 된다. 레이저 빔의 파장은 1064 nm 이고 이 파장에 대한 금속의 광학적 침투깊이는 대략 10 nm 이고 열 침투깊이 1.5 μm 정도 이므로 사용되는 레이저 빔의 반경 0.5 mm 와 비교하면 온도 확산은 1 차원으로 볼 수 있다.

용융된 금속표면으로부터 증발이 일어나며 Hertz-Knudsen 식(2.2) 에 의해서 증발율이 계산되게 된다[4]. 또한 증발된 표면에 의해서 시편의 표면과 공기의 계면의 위치가 변하기 때문에 이동좌표계를 사용 계산하였다. 계면의 위치는 식(2.1) 와 같은 관계에 의해서 계산된다.

$$j_{ev}(t) = (1 - \beta) \frac{P_0(t)}{\sqrt{2\pi R_{al} T_0(t)}} \quad [\text{kg/m}^2\text{s}] \quad (2.2)$$

여기서 β (recondensation ratio) 는 증발되는 알루미늄 플룸이 다시 충돌에 의해 액체 표면에 재응축 되는 비율을 말한다. 더 충분한 에너지가 조사되게 되면 끓는점에 도달하게 되는데 보통 펄스 레이저에 의한 상변화의 시간 스케일이 나노 초 이므로 끓는점을 지나서 과열액체 (superheated liquid) 가 되는 현상이 생기며 따라서 표면에서는 지속적으로 식(2.2) 에 의해서 증발된다.

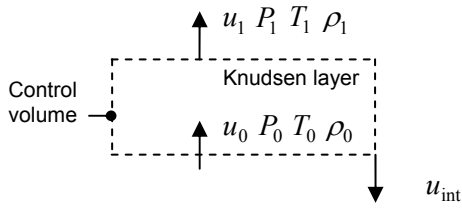


Fig. 1 The change of velocity, pressure, temperature, and density through the Knudsen layer.

액체 금속의 포화압력은 액체-기체 선을 따른다. Rykalin[5] 에 의하면 온도가 $0.3H_{lv}m_{al}/k_B N_A$ 보다 작으면 열적 증발 (thermal vaporization) 을 주요한 증발 메커니즘으로 채택한다.

표면에 조사되는 레이저 빔의 반사율은 온도에 변화 할 것이다[6]. 따라서 열물성치와 함께 광학적 파라미터 또한 온도의 함수로 나타내었다[7].

식(2.1) 을 유한체적법 (Finite volume method) 을 이용하여 차분화 시켰고 이때 외삽적 방법 (explicit method) 를 사용하였다. 용융된 금속 표면에서 증발되는 플룸의 상태는 평형상태가 아니다. 따라서 플룸과 대기 가스 분자 사이에 충분한 충돌이 생긴 후 평형 상태에 도달하게 되는데 보통 2~3 평균 자유 행로 사이에 이루어진다. 표면에서는 반 맥스웰 속도 분포 (half-Maxwellian velocity distribution) 을 가지지만 충돌 후 맥스웰 속도분포를 가지게 된다. 이 불연속층을 Knudsen 층 이라 한다. 플룸은 충돌을 거쳐 평형상태에 도달하게 되거나 또는 용융된 금속 표면에 다시 응축 되기도 한다[4].

$$u_0 = \frac{j_{ev}}{\rho_0} = \frac{1-\beta}{\rho_0} \frac{P_0}{\sqrt{2\pi R_{al} T_0}}$$

$$\rho_1(u_1 - u_{int}) = \rho_0(u_0 - u_{int})$$

$$P_0 + \rho_0(u_0 - u_{int})u_0 = P_1 + \rho_0(u_0 - u_{int})u_1 \quad (2.3)$$

$$h_0 + \frac{1}{2}u_0^2 = h_1 + \frac{1}{2}u_1^2$$

$$P_1 = \rho_1 R_{al} T_1$$

$$h_1 = h_0 + c_p(T_1 - T_0)$$

Knudsen 층을 거치는 동안 온도, 압력, 밀도 그리고 속도의 불연속적인 변화를 겪게 된다. 이 불연속층에 대한 해석을 위해서 Fig. 1 의 검사체적에 대해서 식(2.3) 와 같이 질량, 운동량, 에너지의 보존식을 적용하고, Knudsen 층의 후단에서는 단일 알루미늄 기체가 단원자 분자라고 가정하고 이 상기체 상태 방정식을 사용한다. 증발로 인한 액체와 기체의 계면의 후퇴속도 u_{int} 는 u_1 에 비해서 상대적으로 매우 작기 때문에 0 으로 놓는다.

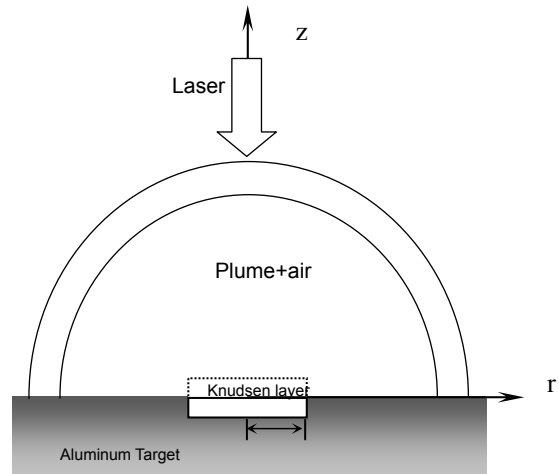


Fig. 2 Physical sketch for laser interaction with ambient gas and metal vapor.

미지수는 $\rho_1, u_1, T_1, P_1, \beta$ 로 5 개이지만 주어진 방정식은 4 개에 불과하므로 추가적인 제한사항이 필요하다. Anisimov[8] 는 u_1 를 해당 기체 온도에서의 음속과 같다고 가정하였고 Knight[9] 와 Ytrehus[10] 는 Knudsen 층 후단에서의 마하수의 향으로 나머지 변수들을 계산하였다. Anisimov, Knight, 그리고 Ytrehus 의 경우 재응축률은 모두 0.18 로 계산하였으며 이 값을 보통 어블레이션 해석에 도입해서 사용하고 있다. 따라서 본 연구는 재응축률에 변화를 주고 이의 유동장에 대한 변화의 양상을 관찰함으로써 지금까지 Knudsen 층 바깥영역에 대한 마하수 1 이라는 가정이 진공이 아닌 대기압 하에서도 받아들일 만한 것인지 알아보 고자 한다.

2.2 유동장 해석

Figure 2 은 레이저 어블레이션으로 유도된 공기와 알루미늄 플룸의 분포에 대한 물리적 모식도이다. 레이저의 급격한 조사로 인해서 생긴 유동에 의한 관성력은 공기의 점성력에 비해서 매우 강하기 때문에 Navier stoke 방정식은 점성 항이 무시된 식(2.4) 과 같은 오일러 방정식 (Euler equation) 이 된다.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{V}) = 0$$

$$\rho \frac{\partial \vec{V}}{\partial t} + \rho (\vec{V} \cdot \nabla) \vec{V} = -\nabla P \quad (2.4)$$

$$\rho \frac{\partial e}{\partial t} + \rho (\vec{V} \cdot \nabla) e = -P (\nabla \cdot \vec{V})$$

$$P = (\gamma - 1) \rho e$$

또한 압축성 유동이므로 에너지 방정식과 상태방정식을 결합시켜 계산하여야 하며 온도장과 유동장은 분리되지 않고 서로 결합되게 된다.

따라서 공기에 대한 것뿐 아니라 식(2.5) 처럼 알루미늄 플룸에 대한 질량전달 방정식 (mass transport equation) 을 같이 결합시켜서 유동장을 계산해야 한다. 본 연구에서는 알루미늄 플룸에 대해서 단원자 분자를 가정하여 비열비 (γ) 는 5/3 으로 보며 비열은 온도에 따라 변하지 않는다고 가정한다. 식(2.4) 에서 말하는 밀도 ρ 는 공기와 알루미늄 플룸의 밀도를 합한 것이다.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho y) + \nabla \cdot (\rho y \vec{V}) = 0, \quad y \equiv \frac{\rho_{al}}{\rho} \quad (2.5)$$

유동장의 계산에 전산유체역학 상용 소프트웨어를 사용하였다. STAR-CD (version 3.1) 를 이용하여 식(2.3) 에서 얻어지는 결과들을 유동장의 입구 조건으로 사용하여 계산한다. 격자는 180×180 을 채택하였다. 대부분의 연구자들이 유동장에 대해서 하나의 성분 즉 플룸의 유동만을 계산하였다. 그러기 위해서는 분위기의 영향이 무시 되어야 하기 때문에 주로 진공, 0.01 또는 0.001 atm 하에서 실험과 계산이 수행 되었다. 본 연구는 대기압 하에서 계산을 시도했으며 알루미늄 플룸에 대한 질량분율을 고려하여 공기와 함께 유동장을 계산한다.

3. 실험

Figure 3 는 광굴절법을 이용하여 충격파의 도달 시간을 측정하기 위한 실험장치도 이다. 광굴절법은 HeNe 레이저를 탐사빔으로 하여 표면 위를 지나가게 할 때에 Nd:YAG 레이저에 의해서 생기는

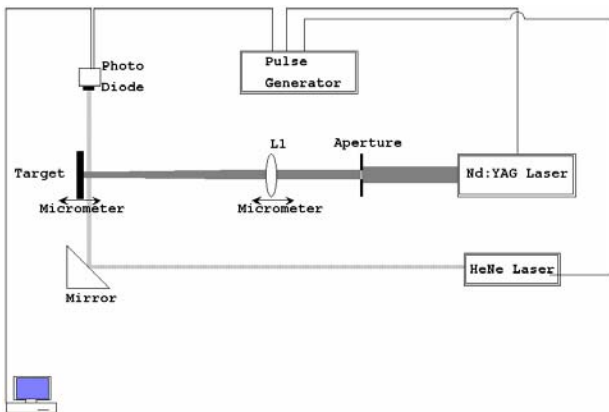


Fig. 3 Experimental setup for beam-deflection measurement.

플룸의 영향 때문에 표면 근처의 밀도장에 변화를 유도하게 된다. 이로 인해서 공기의 반사율이 변하게 되는데 이 공간을 탐사빔이 지나가면서 굴절을 일으키게 되고 빔의 경로가 휘게 된다. 굴절된 시험빔은 검출기에 들어가는 광량에 변화를 주게 되고 이로써 충격파가 도달하였음을 알게 된다. 이와 같은 방법으로 각 위치에 대한 레이저 유도 충격파의 도달 시간을 구할 수 있게 된다.

알루미늄 표면으로부터 거리를 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0 mm 로 변화시켜 가면서 충격파의 도달 시간을 측정하였다. 에퍼처 (aperture) 의 직경은 2 mm 이며 사용된 렌즈는 초점이 150 mm 이며 알루미늄 시편과 2 축 마이크로 스테이지 위에서 같이 고정되어 있다. 1064 nm 파장에서의 레이저 빔의 시간에 따른 변화는 삼각형 펄스를 가지며 ($t_p=12$ ns, $t_r=32$ ns) 반치전폭 (FWHM: Full width at half maximum) 은 약 16 ns 이다. 집속된 레이저 빔의 직경은 1 mm 이다.

4. 결과 및 토의

Figure 4 에 플루언스에 따라서 알루미늄의 표면 온도의 변화를 보여주고 있다. 열적 증발모델의 경우에는 비등점 (2792 K) 를 넘어서 까지 온도가 증가 함을 볼 수 있다. 나노 초 스케일로 금속을 가열 할 때 비등이 되지 않고 온도가 임계값 까지 접근하게 되기 때문이다.

Figure 5 에 충격파의 전파위치를 실험결과와 계산결과를 비교 도시 하였다. 실험으로부터 충격파의 대략적인 평균 속도는 플루언스가 1.77, 5.09, 7.76, 8.4 일 때 각각 0.5, 2.2, 1.9, 1.2 km/s 로 나타났다. Jeong[2]의 실험은 비록 레이저 파장과 빔 반지름과 펄스폭이 다르지만 충격파의 평균 속도는 대기압 하에서 약 1~2 km/s 의 본 연구결과와 유

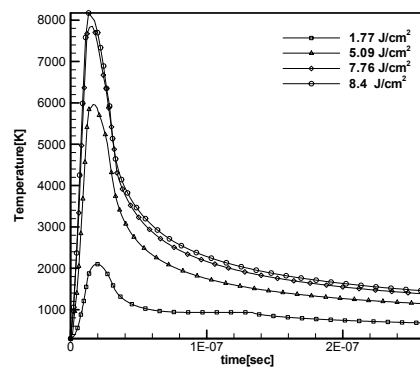


Fig. 4 Temporal variation of the target surface temperature.

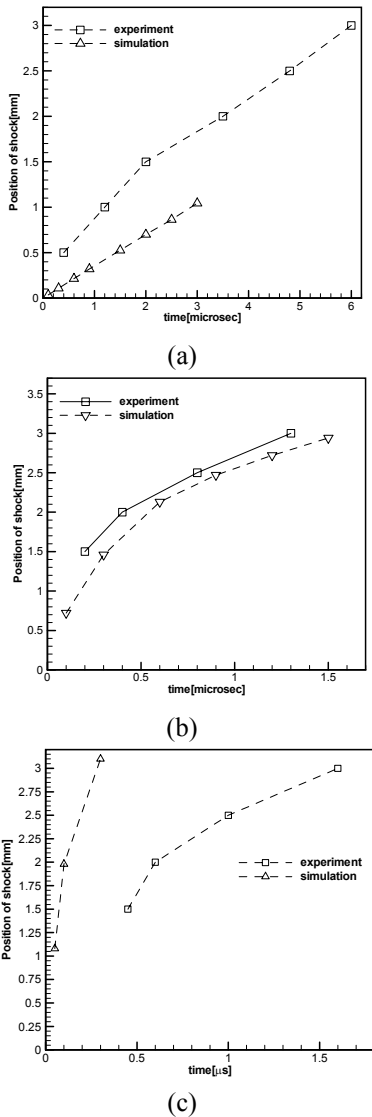


Fig. 5 Time of propagation of the shock wave for various laser fluences. (a) $F=1.77$, (b) 5.09, (c) 7.76

사한 값을 가진다. 1.77 과 5.09 J/cm^2 에서는 실험과 계산이 대체로 잘 일치하지만 7.76, 8.4 J/cm^2 에서 계산 값이 평균 전파 속도를 볼 때 약 10 ~ 15 배 증가하는 것을 볼 수 있다. 알루미늄 플룸의 전파와 충격파의 전파속도는 초기의 발생되는 압력과 대기압의 차에 의해서 크게 변할 것으로 보인다. Figure 6 에 플루언스에 따른 Knudsen 층 끝단에서의 변화를 보여주고 있다. 1.77 J/cm^2 의 경우 표면의 최대온도가 5.09 J/cm^2 의 경우 보다 ~4000 K 크고 이것으로 생기는 최대압력은 1000 에서 5×10^7 Pa 로 증가한다. 따라서 대기압과의 압력차이가 커지면서 결과적으로 충격파 전파 속도가 크게 달라짐을 Fig. 5 에서 알 수 있다.

기존에 연구들은[2,4] 분위기가 진공에 가깝다는 조건 하에 하나의 성분에 대해서만 유동을 계산했

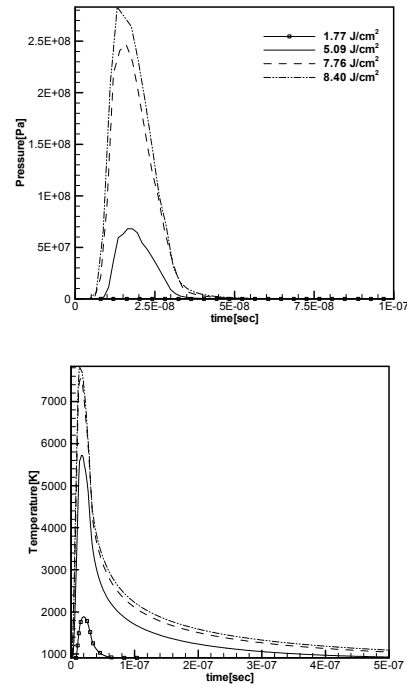


Fig. 6 Variation of (a) pressure, (b) temperature at the edge of Knudsen layer for different fluences.

다. 이것은 유동장의 계산이 바로 플룸의 유동을 대표 한다고 볼 수 있기 때문이다. Figure 7 에는 분위기 압력에 따라 플룸과 공기의 분포를 비교도 시 하였다. 충격전면과 접촉전면 사이의 압축된 공기가 존재한다는 것을 Fig. 7 (b), (c) 의 간격에서 알 수 있다. 또한 1 atm 하에서는 두 접촉면의 간격은 매우 크지만 0.01 atm 에서는 그 간격이 상대적으로 많이 가까워진 것을 관찰 할 수 있다. 이것은 보다 낮은 압력으로 분위기가 조성 될 때 두 접촉면은 거의 같아질 것이며 플룸의 유동만을 계산하여 전체의 유동을 표현할 수 있음을 말하는 것이다.

많은 연구에 있어서 재응축률을 0[11], 또는 0.18[4,9] 을 계산에 포함 시키지만 진공에 가깝다는 가정 하에서 사용 되어왔다. 따라서 본 연구에서는 재응축률의 값을 0.0, 0.18 그리고 0.5 로 변화 시키면서 Knudsen 층 끝단에서의 변화와 또한 유동장의 변화를 보고자 한다. 재응축률의 변화에 따라 유동의 전파가 달라짐을 Fig. 8 을 통해서 알 수 있다. $F=1.77 J/cm^2$ 의 경우에는 재응축률이 변하여도 실험값과 어느 정도 차이가 있지만 $F=5.09 J/cm^2$ 에 대해서는 재응축률의 값에 따라서 실험 값을 기준으로 변동을 일으킨다. 따라서 이전 연구자들이 주로 진공에 가까운 경우에 재응축률의 값을 0.0 또는 0.18 로 가정하는 것은 대기압하에서는 적절하지 못하다.

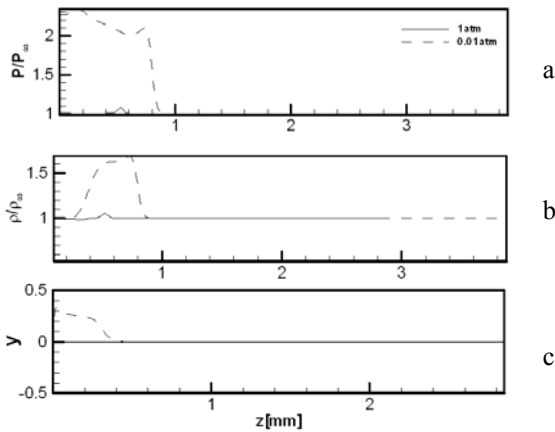


Fig. 7 Distribution of (a) pressure, (b) density, and (c) mass fraction along the z axis for different ambient pressure. ($F=1.77 \text{ J/cm}^2$, $1.5 \mu\text{s}$, $P_{amb} = 1 \text{ atm}$: solid line, 0.01 atm : dashed line)

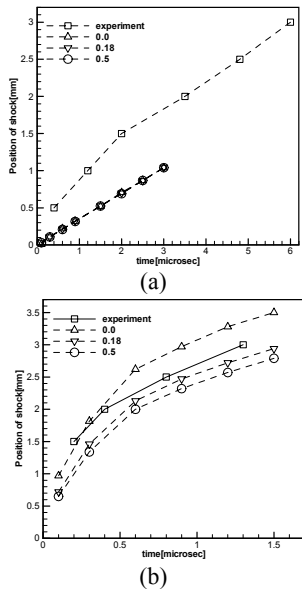


Fig. 8 Comparison between the experimental and calculated results of shock-wave propagation for recondensation ratios (a) 1.77 J/cm^2 and (b) 5.09 J/cm^2 .

5. 결론

기존의 연구들은 직접 개발된 코드를 사용하였으나 본 연구에서는 최초로 상용 CFD 코드를 사용하여 레이저 어블레이션 해석에서 상용코드의 이용 가능성을 입증하였다. 또한 어블레이션 해석에 관한 기존의 연구는 진공에 가까운 분위기 하에서 어블레이션 플룸의 재응축률을 0 또는 0.18로 가정하였다. 하지만 본 연구에서는 대기압 하에서 재응축률의 변화가 증발율의 변화를 가져오고 유동장과 충격파 전파속도에 큰 변화를 주는 것으로 나타났다. 따라서 분위기가 고압의 경우에

는 재응축률을 획일적으로 0 또는 0.18로 설정하는 것은 적절하지 못하다. 계산결과 어블레이션 플룸의 전달현상은 분위기 압력의 영향을 크게 받는 것으로 나타났다. 따라서 분위기가 진공 부근의 저압인 경우를 제외하고는 플룸과 분위기를 동시에 고려하여 유동을 해석하여야 한다.

후기

본 과제는 과학재단 목적기초연구(No. 2001-1-30400-022-2)와 마이크로 열시스템 ERC의 지원으로 수행되었다.

참고문헌

- (1) J. G. Lunney, R. Jordan, "Pulsed laser ablation of metals," Applied Surface Science, Vol. 127-129, 1998, pp.941-946.
- (2) S. H. Jeong, R. Greif, R. E. Russo, " Shock wave and material vapour plume propagation during excimer laser ablation of aluminum samples," Journal of Physics D, Vol. 32, 1999, pp.2578-2585.
- (3) N. Shamsundar, E. M. Sparrow, "Analysis of multidimensional conduction phase change via the enthalpy model," Journal of Heat Transfer, Transaction of ASME, 1975, pp.333-340.
- (4) A. Peterlongo, A. Miotello, R. Kelly, "Laser-pulse sputtering of aluminum: Vaporization, boiling, superheating, and gas-dynamic effects," Physical Review E, Vol. 50, No. 6, 1994, pp.4716-4727.
- (5) N. Rykalin, A. Uglov, A. Kokora, Laser machining and welding, 1975, Pergamon press.
- (6) K. Ujihara, "Reflectivity of metals at high temperature," Journal of Applied Physics, Vol. 43, No. 5, 1971, pp.2376-2383.
- (7) D. R. Lide, Handbook of chemistr and physics, 81st, 2000-2001, CRC press.
- (8) S. I. Anisimov, A. K. Rakhmatulina, "The dynamics of the expansion of a vapor when evaporated into a vacuum," Soviet Physics JETP, Vol. 37, No. 3, 1973, pp.441-444.
- (9) C. J. Knight, "Theoretical modeling of rapid surface vaporization with back pressure," AIAA Journal, Vol. 17, No. 5, 1979, pp.519-523.
- (10) T. Ytrehus, "Theory and experiments on gas kinetics in evaporation," in Rarefied gas dynamics, edited by J.L. Potter, AIAA, 1977, pp.1197-1212.
- (11) A. Vertes, P. Juhasz, M. D. Wolf, R. Gijbels, "Hydrodynamic modelling of laser plasma ionization processes," International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes, Vol. 94, 1989, pp.63-85