

액체의 상폭발 과정에 의한 펄스 레이저 용발률의 증진

김 동 식* · 이 호*

(2000년 12월 30일 접수, 2001년 8월 31일 심사완료)

Enhancement of Pulsed-Laser Ablation by Phase Explosion of Liquid

Dongsik Kim and Ho Lee

Key Words : Pulsed-Laser Ablation(펄스 레이저 용발); Liquid Film(액막); Phase-Explosion(상폭발), Shock Wave(충격파)

Abstract

Enhancement of pulsed-laser ablation by an artificially deposited liquid film is presented. Measurements of ablation rate, ablation threshold, and surface topography are performed. Correlation between material ablation and photoacoustic effect is examined by the optical beam deflection method. The dependence of ablation rate on liquid-film thickness and chemical composition is also examined. The results indicate that photomechanical effect in the phase explosion of liquid is responsible for the enhanced ablation. The low critical temperature of liquid induces explosive vaporization with localized photoacoustic excitation in the superheat limit and increases the ablation efficiency. Experiments were carried out utilizing a Q-switched Nd:YAG laser at near-threshold laser fluences with negligible plasma effect (up to $\sim 100 \text{ MW/cm}^2$).

기호설명

c : 음속
 $D_{i,air}$: 액체표면에서 기체로의 2 성분 물질 확산계수
 F : 레이저 플루언스
 i : 허수단위 $\sqrt{-1}$
 j : 질량유속
 k_B : Boltzmann 상수
 m : 질량 농도
 m_a : 원자 (분자) 질량
 n : 굴절률
 P : 압력
 R : 총괄반사율 또는 기체상수
 R_{12} : 공기와 Al 계면의 반사율
 R_{23} : Al 과 물 계면의 반사율
 T : 온도
 t : 시간

t_l : Nd:YAG 레이저 펄스의 폭 (삼각형 시간 분포 가정)
 t_p : Nd:YAG 레이저 펄스가 최대 강도를 갖는 시간 (삼각형 시간 분포 가정)
 v : 속도
 x : 공간 좌표
 Z : 음향 임피던스 (acoustic impedance)

그리스문자

α : 흡수율
 β : 체적팽창계수
 ΔP : 압력증가
 Γ : Grüneisen 인자, $c^2\beta/C_p$
 λ : 파장
 ρ : 밀도
 τ : 액막의 증발 시간

하첨자

0 : 초기상태
 1 : 공기
 2 : 알루미늄
 3 : 액체 (물)

* 책임저자, 회원, 포항공과대학교 기계공학과
 Email: dskim87@postech.ac.kr
 TEL : (054) 279-2179 FAX : (054) 279-3199

* Department of Mechanical Engineering, University of Texas at Austin

c	: 열역학적 임계상태
d	: 건조 표면의 용발 한계점
l	: 액체
m	: 녹는점
sat	: 포화상태
sp	: Spinodal 과열 한계
v	: 증기상태
∞	: 주위환경

1. 서 론

레이저를 이용한 재료 가공 분야는 고성능 레이저 기술의 발달에 힘입어 잘 확립된 학문 분야로 성장하였다. 특히 펄스레이저를 이용한 생산공정은 짧은 반응 시간과 정밀도에 의해 미세 표면 가공, 박막 증착, 세척 등의 분야에서 핵심적인 위치를 차지하게 되었다. 따라서, 펄스 레이저에 의한 용발 (PLA: Pulsed-Laser Ablation) 과정의 해석은 가열한계 부근에서의 급속한 상변화 과정 해석이라는 학문적 의미 뿐 아니라 실용적인 측면에서도 대단히 중요한 주제로 부각되었다. 본 연구에서는 액체 박막 (thin liquid film)을 나노초 레이저에 의해 용발되는 고체의 표면에 응축 부착시킨 후 레이저 파를 조사하였을 때 발생하는 용발 현상과 그 물리적 기구를 분석하였다. 레이저에 의한 용발 현상은 매우 다양한 물리적 작용에 의하여 발생할 수 있고 복잡한 열적, 화학적, 기계적인 효과를 유발시킨다. 본 연구는 나노초 레이저 파에 의한 용발 과정 중, 열적 기구 (thermal mechanism)에 의하여 고액 계면이 용발될 때 생기는 현상을 분석하였다. 특히 액체 박막의 존재가 용발률 (ablation rate), 표면 형상, 압력파의 발생에 미치는 영향을 중점적으로 다루었다.

액상과 고상이 동시에 존재하는 계면과 레이저 빔과의 상호작용은 여러가지 측면에서 연구되어져 왔다. 우선, 레이저 펄스를 이용한 세척 과정과 관련된 연구는 습식 PLA 법이 마이크론 이하의 미세 입자 제거에 탁월한 성능이 있음을 밝혔다. 이후 액막에 의한 입자 제거의 물리적 기구를 밝히기 위하여 레이저 펄스에 의한 온도장의 확립과 압력파 발생에 관한 많은 연구가 진행되었다.⁽¹⁻⁵⁾ 이들 연구의 경우, 액체 자체는 상변화 과정을 거치지만 고체 표면은 레이저에 의해 손상 되지 않는 낮은 에너지 영역에서 연구가 수행되었다. 둘째로, 레이저 충격가공 (Laser shock processing)과 관련한 일련의 연구들에서는 고에너지 레이저에 의해 생성된 플라즈마의 팽창이 액막에 의해 제한될 때 생기는 효과를 분석하였다.^(6,7) 연구 결과,

액체에 의해 구속된 플라즈마로부터 발생하는 충격파가 시편에 효율적으로 전달되어 재료의 성질을 변형시킬 수 있음이 밝혀졌다. 셋째로, 의공학 관련 분야에서 레이저와 액체를 함유하는 생체 조직과의 반응에 관한 많은 연구들이 수행되었으며 그러한 연구들에서는 액체의 기화가 생체 조직에 미치는 열적, 기계적 효과가 중점적으로 다루어졌다.⁽⁸⁻¹³⁾ 본 연구에서와 같이 액막이 표면 용발률에 미치는 영향에 관한 연구는 근래 몇몇 연구자들에게 의해 수행되었다.^(14,15) 이들 연구는 주로 고에너지 영역 (\sim GW/cm²)에서 가공이 힘든 스테인리스강이나 세라믹 재료를 대상으로 하였고 플라즈마의 거동에 중점을 두어 결과를 해석하였다. 이들은 레이저 충격가공에서와 마찬가지로 액체막에 의한 플라즈마의 구속이 용발을 증진시키는 주 원인임을 주장하였다.

생성 플라즈마의 팽창에 따른 충격파의 효과가 무시할 수 있을 정도로 작은 경우 액체의 기화가 용발 현상에 미치는 영향을 분석하고 용발 증진 과정을 해석하는 것이 본 연구의 주요한 연구 목적이다. 액체 박막의 존재하에서 나노초 레이저 펄스에 의해 알루미늄의 표면을 용발시키면서 용발률 (ablation rate), 용발 한계 레이저 플루언스 (threshold laser fluence), 표면 형상 등을 측정한다. 또한 레이저 펄스에 의해 생성되는 광음향효과 (photoacoustic effect)와 용발 현상의 상호 관련성을 규명하기 위하여 광굴절법 (optical beam deflection method)을 이용하여 압력파를 측정하였다. 액막의 두께가 용발 현상에 미치는 영향을 액막의 두께를 상대적으로 변화시키면서 정성적으로 고찰하였으며 액체의 성분이 미치는 영향을 알아보기 위해 실험을 순수한 물과 물/isopropanol 혼합액 두가지를 사용하여 반복하였다.

2. 실험방법

실험은 Q-스위치가 장착된 Nd:YAG laser (제조사: Continuum, 모델: Surelite II-10, $\lambda=1064$ nm, 최대 펄스 에너지=600 mJ, 반치전폭=6 ns)에 의하여 생성 플라즈마의 영향이 작은 저에너지 영역 (\sim 100 MW/cm²)에서 수행되었다. 방출되는 레이저 빔의 직경은 7 mm 이며 Gaussian 에너지 분포를 갖는다. 본 연구에서는 직경 1.5 mm 의 중심부를 제외한 부분을 원형 세공 (aperture)을 써서 차단하여 빔의 에너지 분포를 대략적으로 균일하게 만들었다. 실험에서는 Boron 첨가 p-형 실리콘 (1-0-0 방향)에 부착된 100 nm 두께의 알루미늄 박막과 두께

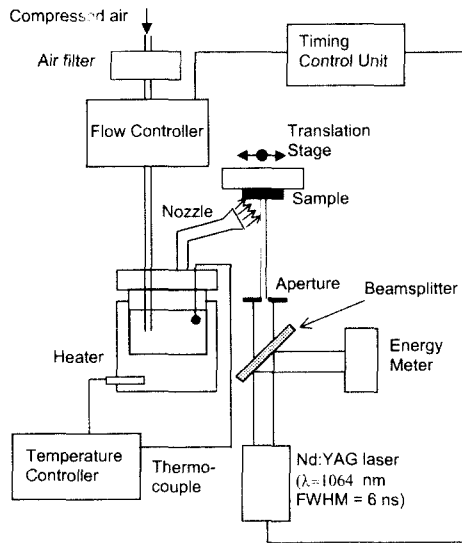


Fig. 1 Schematic diagram of the liquid-assisted PLA system

100 μm 인 시편을 공기중에서 용발시켰다. 따라서 표면에 적층된 산화막에 의하여 용발 한계 에너지가 순수 물질에 비해 상당히 낮아지게 된다. Al 박막의 경우 그 거칠기가 1 nm 이하이고 두께 100 μm 인 시편의 경우는 그 거칠기가 약 1 μm 정도이다.

알루미늄을 재료로 선택한 이유는 액막이 존재하지 않는 경우 그 용발 과정이 비교적 잘 알려진 대표적인 금속 물질이기 때문이다.^(16,17) 나노초 레이저에 의한 알루미늄의 용발 과정을 열적 기구에 의한 기화현상으로 해석할 수 있음은 잘 알려져 있다. 액체로 사용된 물과 isopropanol 은 물성이 잘 알려진 안정된 물질로서 주어진 파장 1064 nm 에서 액체 자체에 의한 레이저 에너지 흡수가 없으므로 모든 에너지가 고체 표면에서만 흡수된다.

Fig. 1 에는 주 실험장치의 개략도가 나타나 있다. 레이저 펄스의 조사 직전에 액체 증착 시스템에 의하여 액체 박막이 형성된다. 액막은 포화 증기를 상온에 노출된 시편 표면에 응축시키는 방법을 이용하여 만들어지고 증기의 분사 압력 또는 시간을 조절하면 마이크로미터 단위에서 정밀한 조절이 가능하다. 본 연구에서 증기는 정제된 공기압을 이용하여 분사되었으며, 통상적인 실험조건 하에서 두께 수 마이크로미터 이내의 액막이 약 1 초 정도의 주기동안 형성되고 증발과정에 의해 소멸된다. 용발 실험 후, 표면의 형상은 stylus 접촉 형태의 표면 형상 측정 장치로 계측한다.

Fig. 2 에는 레이저와 시편의 상호작용시 발생하

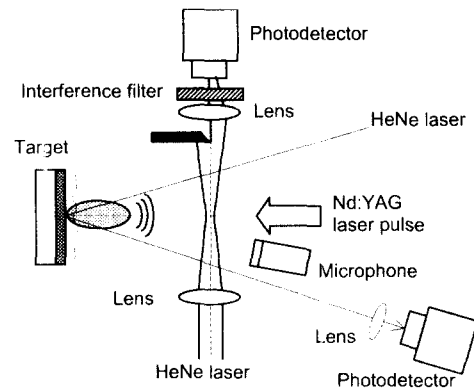


Fig. 2 Experimental set up for monitoring laser-induced photoacoustic signal by the optical beam deflection technique

는 압력파를 실시간으로 계측하기 위한 광굴절 실험 장치의 개략이 나타나 있다. 광굴절법에 의한 나노초 실시간 압력 계측에 관하여서는 이전 연구에서 자세히 소개한 바 있다.⁽¹⁸⁾ 본 연구에서는 유사한 실험법을 이용하여 압력파를 공기중 원거리 영역 (far field) 에서 측정하므로 시간 정밀도가 다소 감소한다 (~300 ns). 따라서 광굴절 신호는 저주파 영역의 광음향학적 효과만을 반영한다. 계측 레이저 빔과 시편의 거리는 약 15 mm 로 유지하여 레이저 용발물의 전파가 광굴절 신호에 영향을 미치지 못하도록 하였다. 광굴절 신호는 굴절률의 공간 분포 즉 공기의 밀도에 따라 정해지므로 저에너지 영역에서는 압력파를 직접적으로 나타내지 않지만 고에너지 영역에서 충격과 전파되는 경우에는 온도, 압력의 복합적인 변화에 따라 광굴절 신호가 생성된다. 광굴절 신호의 계측을 위하여서는 연속파 HeNe 레이저 ($\lambda=633 \text{ nm}$)와 Si 광다이오드가 이용되었다. Fig. 2 에 표시된 반사율 측정 장치는 액상의 기화 개시를 탐지하기 위한 것이다. 레이저 에너지가 액상의 기화 개시점을 초과하면 핵비등하는 기포가 발생시키는 산란과 간섭 효과에 따라 반사율이 변화한다. 나노초 레이저에 의한 액체 박막의 급속한 비등의 경우 (10^{10} K/s), 1 ms 의 시간 단위에 걸친 반사율의 변화가 일어난다는 사실이 과거 연구에 의해 알려져 있다.⁽⁵⁾

용발률 측정 실험과 더불어 액막의 두께가 용발에 미치는 영향을 분석하기 위한 실험을 수행하였다. 증기 분사 시스템으로부터 포화증기가 분사되어 고체 표면에 응축되고 증발하는 현상은 레이

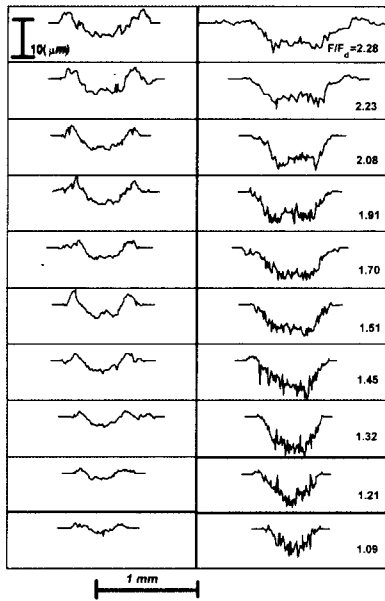


Fig. 3 Cross sectional profiles of aluminum surfaces (100 μm-thick foils) after 30 Nd:YAG laser pulses. The left and right columns correspond to dry and liquid-coated surfaces, respectively. Nd:YAG laser beam diameter is 1.3 mm

지의 표면 반사율을 실시간 계측하여 포착할 수 있다. 액막의 형성은 레이저 빔의 산란과 간섭을 가져오므로 레이저 빔의 강도를 실시간 관측하면 응축 및 증발에 걸리는 대체적인 시간을 알 수 있다. 액막의 증발을 상온에서 농도차에 의한 물질 전달의 결과로 해석하면 단위면적당 증발량은 다음 관계식으로 표시된다.

$$j = -\rho D_{l-air} \frac{\partial m_l}{\partial x} \Big|_{x=0} = \rho m_l \sqrt{D_{l-air} / t \pi} \quad (1)$$

윗 식에서 기액 계면에서 액체의 질량농도 m_l 은 $m_{ls} = P_{sat}(T_s) / P_s$ 로 주어지고 시간 간격 τ 동안 증발하는 증발량은 $2 \rho m_{ls} \sqrt{D_{l-air} \tau / \pi}$ 로 계산된다. 윗 식에 수증기와 물과의 이성분 확산계수 $D_{l-air} = 2.6 \times 10^{-5}$ 를 대입하면 360 nm 두께의 액막이 1 초에 걸쳐 증발함을 알 수 있다. 통상적인 액막 분사시 액막의 공간섭 효과에 의한 분광현상이 관측되는 것으로 미루어 액막의 두께는 가시광선 파장과 유사한 정도의 크기를 갖음을 알 수 있고 이는 위의 계산 결과에도 부합한다. 물론 위의 추산은 실제 경우, 즉 액막 분사에 의해 불가피하게 유도되는

공기 유동이 존재하는 경우에 비해 적은 값을 예측할 것이고 액막 두께의 절대값을 측정하기 위해서는 공간섭법 등을 써서 두께를 직접 계측하여야 한다. 본 연구에서는 액막의 두께가 $\sqrt{\tau}$ 에 선형적으로 비례한다는 위의 관계식을 이용하여 τ 의 변화를 관측하여 액막의 두께를 상대적으로 변화시켰다.

광굴절 신호의 측정을 통한 압력과 분석과는 별도로 저주파 영역에서 광음향 신호를 직접 계측하였다. 실험은 상용 콘덴서 마이크로폰을 이용하여 광굴절 신호 측정과 병행하여 실시되었으며 원거리 영역에서 <20 kHz 이하의 성분들이 계측되었다.

3. 실험결과 및 해석

3.1 용발률, 용발 한계 플루언스, 표면 형상

100 μm 두께의 알루미늄 시편에 Nd:YAG 레이저 펄스를 30 회 조사한 후 측정된 용발 단면이 Fig. 3 에 나타나 있다. 좌측열의 경우, 건조한 표면이 레이저에 의해 용발된 단면을 표시한 반면 우측 열은 액막이 부착된 표면의 용발 후 단면을 나타냈다. 그림에서 단면적당 조사 레이저 플루언스는 건조 표면의 용발이 시작되는 한계 플루언스 F_d 로 무차원화된 값이다. 좌우열의 표면 형상을 비교할 때, 액막에 의한 용발률의 증진효과는 매우 뚜렷이 나타난다. 실험 결과, 액막이 존재하는 경우에 제거된 물질의 부피가 통상적인 건조 용발 실험에 의해 얻어지는 값보다 수배 이상 크다는 사실을 알 수 있다. 산화물이 분화구와 유사한 형상을 형성하며 용발면 주위에 적층되는 현상이 액막 존재시에는 뚜렷하게 관측되지 않는데 이는 기존의 고에너지 영역에서 얻어진 실험에서도 관측되는 현상이다.^(14,15) 액막의 존재는 용발물의 전파 뿐 아니라 계면에서 표면장력에 의해 유도되는 유동 현상을 크게 변화시키므로 표면 형상의 생성에 영향을 미침을 알 수 있다. Fig. 4 는 부피 용발률 (펄스당 제거된 평균 체적)을 무차원화된 레이저 플루언스의 함수로 나타낸다. 그림으로부터 용발 한계점 근처의 레이저 플루언스 영역에서 액막의 존재가 용발률을 증가시킴을 알 수 있다. 주목할 것은 액막에 의한 용발률의 증진이 레이저 플루언스의 증가와 더불어 더욱 커진다는 사실이다. 이러한 비선형 거동은 용발률의 증가가 단순히 액막에 의한 레이저 에너지 흡수율의 증가 때문만이 아님을 보여준다. 용발 한계 플루언스는 100 nm

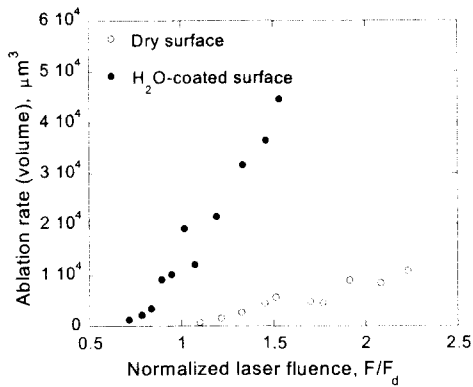


Fig. 4 Ablation rate of dry and liquid-coated Al surfaces (100 μm -thick foil) as a function of laser fluence normalized by the ablation threshold of a dry surface F_d

알루미늄 박막의 경우와 100 μm 두께 시편의 경우, 각각 640 mJ/cm^2 에서 380 mJ/cm^2 그리고 650 mJ/cm^2 에서 500 mJ/cm^2 으로 감소하는 것으로 예측되었다. 측정된 값은 순수물의 용발 한계값보다 상당히 낮음을 알 수 있는데 이는 실험이 공기중에 노출된 상태로 진행되면서 산화막이 형성되었기 때문이다. 예를 들면 액막 존재시 $F=500$ mJ/cm^2 에서 열전도 방정식에 의한 계산되는 표면의 최고온도는 순수 알루미늄의 경우 513 K 에 불과하다. 본 연구의 목적이 액막의 존재가 고체의 용발 현상에 미치는 영향을 건조 표면의 경우와 상대적으로 비교하는 것이므로 산화막을 제거시키기 위한 특별한 노력을 기울이지는 않았다.

액막의 광학적 성질에 의하여 레이저 에너지의 결합효율 (energy-coupling efficiency)이 증가하고 그에 따른 용발 증진이 일어났을 쉽게 예상할 수 있다. 물의 굴절률이 공기의 굴절률보다 크므로 공기-액막-알루미늄 계면의 총괄 흡수율이 공기-알루미늄 계면의 흡수율보다 커지게 된다. Nd:YAG 레이저 빔의 결맞음길이 (coherence length)는 일반적으로 매우 짧으므로, 액체 박막 내 레이저 빔의 다중 반사에 의한 간섭 효과는 크지 않다.⁽¹⁹⁾ 따라서 액막을 포괄하는 시스템의 총괄 반사율은 아래와 같이 표현된다.

$$R = 1 - \frac{(1 - R_{12})(1 - R_{23})}{1 - R_{12}(1 - R_{23})} \quad (2)$$

윗 식에 따르면 물의 경우에 총괄 표면 흡수율 $(1-R)$ 은 1064 nm 의 파장에서 액막의 부착에 의하여 0.08 에서 0.108 로 증가한다. 계산에는 알루미늄과 물의 굴절률 $n_2=1.61+8.81i$ 와 $n_3=1.32+1.50 \times 10^{-6}i$ 이 각각 이용되었다.^(20,21) Fig. 5

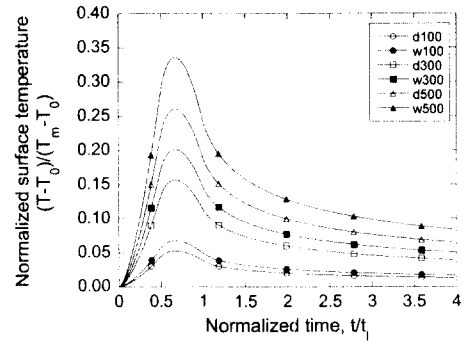


Fig. 5 Numerically computed temperature transients for dry and liquid-coated Al surfaces exposed to the Nd:YAG laser pulse irradiation. Triangular temporal distribution of laser energy has been assumed with $t_p=6$ ns and $t_r=12$ ns

에는 용발 한계점 근처에서 레이저 에너지의 흡수에 의한 온도 상승을 Al 과 액체를 고려하여 수치적으로 계산한 결과를 제시하였다. 액막의 상대적으로 높은 열전도율에도 불구하고 에너지 흡수율 상승에 의해 표면의 온도의 약 25 % 정도 증가함을 수치계산을 통해 확인할 수 있다. Fig. 4 에서 건조 표면의 용발률은 $\ln(F/F_d)$ 에 선형적으로 비례하지만 액막 PLA 법에서는 용발률의 증가가 레이저 에너지 증가에 따라 더욱 급격히 이루어짐을 볼 수 있다. 이것은 레이저 에너지 흡수율의 증가가 용발률 증가의 유일한 원인이 아님을 다시 한번 보여준다.

습식 레이저 입자제거 등과 관련된 일련의 연구들은 레이저에 의한 액체의 급속한 가열 ($\sim 10^{10}$ K/s)이 과열한계 (superheat limit)까지 액체를 과열시키고 임계점 근처에서 준평형 상태 액상의 상폭발 (phase explosion) 또는 폭발적기화 (explosive vaporization)를 유발함을 입증하였다.⁽¹⁻⁵⁾ 그러한 상폭발 과정은 광음향교란 (photoacoustic excitation)을 유발하므로 용발 현상에도 영향을 미치게 된다. 따라서 본 연구에서와 같이 고체 표면 자체가 용발 한계점 근처의 에너지에서 열적 기구에 의해 용발되는 경우 액체의 상폭발이 용발률을 증진시킬 것임을 예상할 수 있다. 액체가 과열한계에 이르면 균일핵생성률 (homogeneous nucleation rate)이 급격히 증가하여 상폭발이 초래된다. 이때, 핵생성되는 기포 내부의 압력은 아래와 같은 평형압력보다 커야 한다.⁽²²⁾

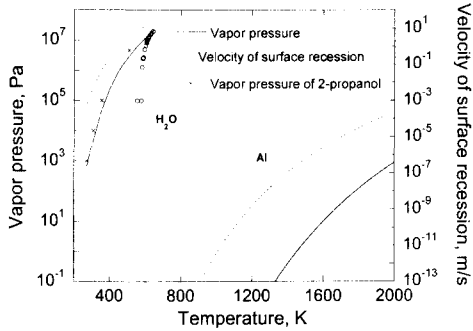


Fig. 6 Vapor pressure curves for water, isopropanol, and aluminum. The velocity of surface recession by normal vaporization is also presented for Al and water

$$P_v = P_{sat}(T) \exp\left\{\frac{P_l - P_{sat}(T)}{\rho RT}\right\} \quad (3)$$

윗 식에 의해 계산되는 압력은 각 온도에서 포화 압력에 비례하고 액체의 온도가 임계온도에 접근하면 압력은 $0.79P_c$ 에 접근한다. 결과적으로, 기포의 팽창시 국소적으로 매우 높은 압력 영역이 형성되고 계면에 작용하는 압력파가 고체 표면 용발에 큰 영향을 미칠 수 있다. Fig. 6 은 알루미늄, 물, 그리고 isopropanol 의 증기압 선도이다. 그림에는 실험에 의해 측정된 물의 과열한계 값도 표시되어 있다.⁽²³⁾ 그림에 나타난 바와 같이 동일 온도에서 물의 포화압력은 알루미늄의 포화압력보다 훨씬 높다. 또한 용발 한계 에너지 부근에서 알루미늄의 용발시 표면 온도는 Al 의 임계온도보다 훨씬 낮고 해당 증기압이 낮으므로 표면 기화 (surface vaporization)에 의한 알루미늄의 용발은 무시할 수 있을 정도로 작다. 반면 액체의 경우, 비교적 낮은 온도에서도 높은 압력이 형성되므로 균일핵생성에 의한 폭발적 기화과정이 지배적이다. 그림에 표시된 알루미늄과 물의 표면 기화에 의한 표면 강하 속도는 다음과 같은 Hertz-Knudsen 식에 의해 계산되었다.⁽²⁴⁾

$$v = \frac{P_{sat}(T)}{\rho \sqrt{2\pi(k_B/m_a)T}} \quad (4)$$

위에 언급된 실험 결과를 종합하면, 용발 한계 점 부근에서 Al 표면의 용발은 단순한 용융-기화

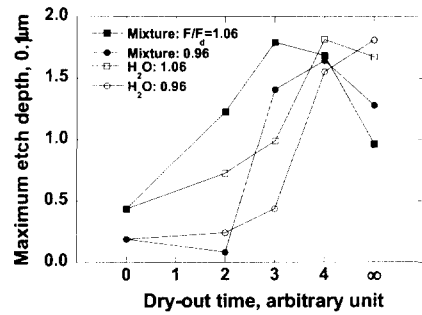


Fig. 7 Dependence of ablation rate (100 nm thin film) on liquid dry-out time, i.e., liquid-film thickness. The open and solid markers represent pure water and water-isopropanol mixture (50% by volume), respectively

과정이 아니라 취성 재료의 펄스레이저 용발에서와 같이 압력파에 의한 광기계적 기구 (photomechanical mechanism)와 깊이 관련된 것임을 유추할 수 있다. 따라서 증기 상태의 Al 뿐 아니라 광기계적 기구에 의해 분출된 거체 Al 이 용발물에 포함되어 있을 가능성이 크다. 하지만 구체적인 용발률 증진의 기구를 밝히기 위해서는 추가적인 연구가 필요함은 물론이다. 한편 용발 한계점 이상의 에너지에서 용융액이 형성되는 경우, 용융물 배출 (melt ejection)이 압력파의 영향으로 증가하므로 용발률이 크게 증가하게 된다.

용발률과 용발 후 표면형상을 측정하는 실험을 100 nm 박막을 이용하여 반복 수행되었다. 실험 결과, 100 μm 두께의 시편을 이용한 실험에서와 유사한 현상이 관측되었다.

3.2 액막 두께의 영향

액막 두께가 용발 현상에 미치는 영향을 물과 물/isopropanol 혼합물 (체적비율 50%) 두 액체에 대하여 분석하였다. 실험은 Si 표면에 적층된 박막 Al 의 용발률을 액막의 두께를 변화시키면서 측정하는 방식으로 수행되었다. 생성 동공의 최대 깊이를 τ 의 함수로 측정한 결과가 Fig. 7 에 주어 져 있다. τ 는 액막의 증착이 시작되는 시점부터 완전히 증발될 때까지의 시간을 나타낸다. 그림에서 $\tau=0$ 과 ∞ 는 각각 건조 시편과 두께 1 mm 이상의 액막이 지속적으로 존재하는 조건을 나타낸다. 액막의 두께가 얇은 경우 용발 현상이 액막의 두께에 매우 민감하게 변화함을 그림으로부터 알 수

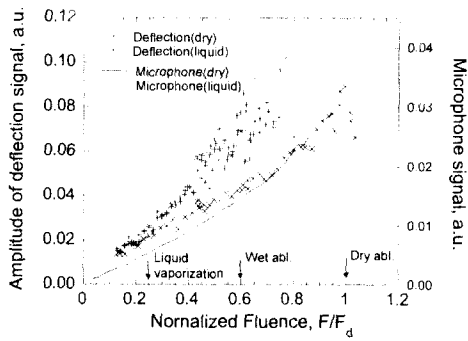


Fig. 8 Amplitude of photoacoustic-deflection and microphone signals as a function of laser fluence normalized by the ablation threshold of a dry surface F_d

있다. 두 액체의 경우 모두, 액막의 두께가 증가함에 따라 처음에는 용발 깊이가 증가하지만 일정한 임계 두께에 이르면 용발 깊이가 다소 감소함을 알 수 있다. 2 장에 서술된 바와 같이 액막의 증발 시간 τ 와 액막의 두께의 관계는 액체의 종류에 따라 다르므로 Fig. 7 에 나타난 물과 isopropanol 수용액의 실험 결과를 직접 비교할 수는 없다. 하지만 실험 결과에 따르면 액막 두께의 영향이 액체의 성분에 의한 효과에 비해서 더욱 중요함은 명백하다. 한편, 액막의 두께가 충분히 두꺼워서 무한 액체로 취급이 가능한 경우 두 액체의 차이를 살펴보면, 물의 경우 용발 깊이가 isopropanol 수용액에 비해 약 30~50% 정도 크다는 것이 $F=610 \sim 680 \text{ mJ/cm}^2$ 의 범위에서 관측된다. 이는 Fig. 6 에 표시된 바와 같이 물의 임계 압력이 isopropanol 의 임계압력보다 크므로 상폭발 과정에서의 더욱 현저한 용발 증진을 유도하리라는 예측과 일치하는 결과이다.

3.3 압력파 방출

Fig. 8 에는 Al 박막에서 방출된 광음향 굴절 신호가 나타나 있다. 건조 표면의 경우, 저에너지 영역에서는 열탄성 기구 (thermoelastic mechanism)에 의한 압력파가 발생되고 진폭은 레이저 플루언스에 선형 비례한다. 매우 짧은 레이저 펄스에 의해 생성되는 열탄성 압력파의 진폭은 $\Delta P \sim \Gamma \alpha F$ 에 의해 주어진다.⁽²⁵⁾ 레이저 플루언스가 증가하여 표면이 용발되는 경우 용발물의 팽창에 의한 약충격파 (weak shock wave)가 생성되고 압력파의 크기가 증가하게 된다. 반면, 고체 표면이 액체와 접촉하는 경우에는 액체의 기화시 발생하는 압력파에 의하여 비교적 낮은 레이저 플루언스 영역에서도 압력

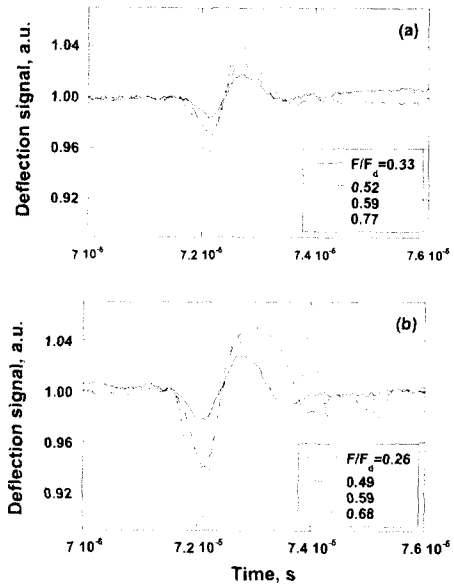


Fig. 9 Nd:YAG laser induced photoacoustic deflection signals from (a) dry and (b) water-coated Al surfaces (100 nm thin film on Si substrate)

파의 증폭이 일어난다. 레이저 플루언스가 고체 표면의 용발 한계 플루언스보다 낮은 경우, 액체와 접촉하는 고체 표면에서의 액체의 폭발적 기화에 의한 압력파의 증진 현상은 기존의 연구에서 이미 다룬바 있다.^(5,18) 본 연구에서는 액막의 도움을 받아 고체 표면이 용발되는 경우 압력파의 방출을 예측하였고 액막의 존재가 용발물 뿐 아니라 방출 압력파의 진폭 및 주기를 증가시킴을 확인하였다. 먼저 표면의 총괄 흡수율이 액막에 의해 상승하므로 표면 온도가 상승함은 이미 지적한 바 있다. 그와 더불어 음향 임피던스 (acoustic impedance)의 정합 효과에 따라 고체 표면에서 생성되는 압력파가 공기 중으로 전달되는 효율이 증가하게 된다. 물과 공기의 음향 임피던스는 각각 $Z_3=1.49 \times 10^6 \text{ kg/m}^2\text{s}$ 와 $Z_1=410 \text{ kg/m}^2\text{s}$ 이므로 액막으로부터 공기로의 투과율이 커지게 된다. Fig. 8 에 나타난 광굴절 신호는 액체의 기화 한계점 이상의 영역에서 얻어진 것이므로 액막의 광학적, 음향학적 성질에 의한 압력 증진 효과 뿐 아니라 액체의 기화에 의해 압력 증진 효과를 반영한다. Fig. 8 로부터 레이저 플루언스가 증감함에 따라 광굴절 신호가 더욱 급격히 증가됨을 알 수 있다. 이는 앞서 언급한 상폭발 기구에 의한 국소적 고압 영역

이 생성되기 때문이며 상폭발시 발생하는 국소 압력파가 용발률 증진의 주 원인이라는 추론에 잘 부합된다. 저 주파 영역에서의 광음향 방출 신호를 비교하기 위하여 마이크로폰을 이용하여 측정 한 음향 신호 또한 Fig. 8 에 광굴절 신호와 더불어 표시하였다. 그림은 저주파 음향 신호와 광굴절 신호가 유사한 형태를 띠고 있음을 보여준다. 이러한 결과는 광굴절 신호가 용발률의 전파에 영향을 받지않고 압력구배의 변화를 올바르게 반영함을 증명해 준다.

광굴절 신호의 시간에 따른 파형이 Fig. 9 에 표시되어 있다. 그림에서 무차원 레이저 플루언스 $F/F_c=0.24$ 와 0.60 은 각각 액체의 기화 한계점 (vaporization threshold) 과 액막 존재시 표면의 용발 한계점을 나타낸다. 액체의 기화가 일어나면 열탄성 (thermoelastic) 작용에 의해 발생하는 압력파보다 긴 형태의 압력파가 발생됨은 잘 알려져 있다.^(5,18) 본 실험 결과 표면의 용발은 단순한 액체의 증발에 의한 것 보다 더욱 긴 주기의 굴절 신호를 발생시키는데 이는 표면으로부터 방출된 알루미늄 용발물이 주위로 전파하는 과정에서 압력파에 영향을 미치기 때문이다.

3.4 상폭발 모델의 타당성

나노초 레이저에 의한 액체의 용발을 폭발적 기화 현상이라는 열기구 (thermal mechanism)에 기반한 현상으로 해석하는 방법의 타당성에 관해서는 많은 연구가 진행된 바 있다. 특히, K_2CrO_4 수용액의 용발 현상을 가시화 하여 얻은 실험 결과 (충격파의 전파)를 상폭발 모델 및 2 차원 Euler 방정식에 의한 계산 결과와 비교한 최근 연구 결과는 나노초 레이저 펄스에 의한 용발을 흡수 액체의 상폭발로 해석할 수 있음을 보여주었다.⁽²⁵⁾ 제시된 상폭발 모델에서는 액체의 온도가 과열한 계점 까지 증가한 후 급격한 균일핵생성에 의해 순간적으로 기화가 일어난다고 가정하였고 그 이하의 온도에서 액체의 기화는 Hertz-Knudsen 관계식으로 표현했다. 물의 경우, Van der Waals 상태식을 이용하면 $T_{vp} = 0.84T_c$ 로 주어진다. 이러한 모델은 광화학적 효과 (photochemical effect) 및 플라즈마의 영향을 배제한 것이므로 본 연구가 대상으로 하는 용발 한계점 부근 (near-threshold regime)에서 열기구에 의한 용발에도 적용될 수 있다. 따라서 액체의 상폭발 과정이 용발률 증진의 원인임을 간접적으로 증명한다.

4. 결론

본 연구를 통해 액체 박막의 존재가 나노초 레이저에 의한 용발 한계에너지를 20~40 % 정도 낮추고 한계점 부근에서 고체의 용발률을 크게 증가시키는 것을 보였다. 또한 용발률의 증진은 액막에 의한 레이저 빔 흡수율의 증가 뿐 아니라 다른 비선형 기구에 의한 것임을 밝혔다. 실험 결과, 과열 한계점 부근에서 일어나는 액체의 상폭발이 방출 압력파의 진폭을 증가시킴을 확인하였고 이를 용발률 증진의 원인으로 제시하였다. 액체 박막에 의한 펄스 레이저 용발률 증진을 최대로 만드는 최적 액막 두께가 존재하며 그보다 두께가 얇은 영역에서는 용발률이 액막의 두께에 크게 영향을 받는 것으로 나타났다. 본 연구는 액막을 이용한 용발 기법이 통상적인 방법으로는 가공이 힘든 세라믹 등 강성 재료의 가공에 이용될 수 있음을 보여준다.

후 기

본 연구는 University of Texas at Austin 의 Research Initiation Grant 와 포항공과대학교 자체과제의 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) Imen, K., Lee, S. J., and Allen, S. D., 1991, "Laser-Assisted Micron Scale Particle Removal," *Applied Physics Letters*, Vol. 58, pp. 203~205.
- (2) Zapka, W., Tam, A. C., Ayers, G., and Ziemlich, W., 1992, "Liquid Film Enhanced Laser Cleaning," *Microelectronic Engineering*, Vol. 17, pp. 473~478.
- (3) Tam, A. C., Leung, W. P., Zapka, W., and Ziemlich, W., 1992, "Laser-Cleaning Techniques for Removal of Surface Particulates," *Journal of Applied Physics*, Vol. 71, pp. 3515~3523.
- (4) Héroux, J. B., Boughaba, S., Ressejac, I., Sacher, E., and Meunier, M., 1996, "CO₂ Laser-Assisted Removal of Submicron Particles From Solid Surfaces," *Journal of Applied Physics*, Vol. 79, pp. 2857~2862.
- (5) She, M., Kim, D., and Grigoropoulos, C. P., 1999, "Liquid-Assisted Pulsed Nd:Yag Laser Cleaning" accepted by *Journal of Applied Physics*.
- (6) Berthe, L., Fabbro, R., Peyre, P., Tollier, L., and Bartnicki, E., 1997, "Shock Waves from a Water-Confined Laser-Generated Plasma," *Journal of Applied Physics*, Vol. 82, pp. 2826~2832.
- (7) Peyre, P., Berthe, L., Fabbro, R., Scherpercel, X., and Bartnicki, E., 1997, "Laser Shock Pressing of

- Materials: Characteristics and Application of the Process," in *Lasers in Material Processing, SPIE Vol. 3097*, pp. 558-569.
- (8) Teng, P., Nishioka, N. S., Anderson, R. R., and Deutsch, T. F., 1987, "Optical Studies of Pulsed-Laser Fragmentation of Biliary Calculi," *Applied Physics B*, Vol. 42, pp. 73-78.
- (9) Cross, F. W., Al-Dhahir, R. K., and Dyer, P. E., 1988, "Ablative and Acoustic Response of Pulsed UV Laser-Irradiated Vascular Tissue in a Liquid Environment," *Journal of Applied Physics*, Vol. 64, pp. 2194-2201.
- (10) Rink, K., Delacrétaz, G., and Salathé, R. P., 1992, "Fragmentation Process Induced by Nanosecond Laser Pulses," *Applied Physics Letters*, Vol. 61, pp. 2644-2646.
- (11) Van Leeuwen, T. G., Jansen, E. D., Motamedi, M., and Welch, A. J., 1994, "Excimer Laser Ablation of Soft Tissue: A Study of the Content of Rapidly Expanding and Collapsing Bubbles," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 30, pp. 1339-1345.
- (12) Oraevsky, A. A., Jacques, S. L., and Tittel, F. K., 1995, "Mechanisms of Laser Ablation for Aqueous Media Irradiated under Confined-Stress Conditions," *Journal of Applied Physics*, Vol. 78, pp. 1281-1290.
- (13) Paltauf, G. and Schmidt-Kloiber, H., 1996, "Microcavity Dynamics During Laser-Induced Spallation of Liquids and Gels," *Applied Physics A*, Vol. 62, pp. 303-311.
- (14) Dupont, A., Caminat, P., Bournot, P., and Gauchon, J. P., 1995, "Enhancement of Material Ablation Using 248, 308, 532, 1064 nm Laser Pulse with a Water Film on the Treated Surface," *Journal of Applied Physics*, Vol. 78, pp. 2022-2028.
- (15) Geiger, M., Becker, W., Rebhan, T., Hutfless, J., and Lutz, N., 1996, "Increase of Efficiency for the XeCl Excimer Laser Ablation of Ceramics," *Applied Surface Science*, Vol. 96-98, pp. 309-315.
- (16) Ho, J. R., Grigoropoulos, C. P., and Humphrey, J. A. C., 1995, "Computational Study of Heat Transfer and Gas Dynamics in the Pulsed Laser Evaporation of Metals," *Journal of Applied Physics*, Vol. 78, pp. 4696-4709.
- (17) Amoroso, S., Berardi, V., Bruzzese, R., Capobianco, R., Velotta, R., Armenante, M., 1996, "High Fluence Laser Ablation of Aluminum Targets: Time-of-Flight Mass Analysis of Plasmas Produced at Wavelengths 532 and 355 nm," *Applied Physics A*, Vol. 62, pp. 533-541.
- (18) Park, H. K., Kim, D., and Grigoropoulos, C. P., 1996, "Pressure Generation and Measurement in the Rapid Vaporization of Water on a Pulsed-Laser-Heated Surface," *Journal of Applied Physics*, Vol. 80, pp. 4072-4081.
- (19) Hecht, J., 1986, *The Laser Guidebook*, McGraw-Hill New York.
- (20) Weast, R. C., Astle, M. J., and Beyer, W. H. ed., 1986, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press, Boca Raton.
- (21) Palik, E. D., ed., 1991, *Handbook of Optical Constants of Solids II*, Academic Press, San Diego.
- (22) Carey V. P., 1992, *Liquid-Vapor Phase-Change Phenomena*, Hemisphere, Washington.
- (23) Avedisian, C. T., 1985, "The Homogeneous Nucleation Limits of Liquids," *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, Vol. 14, pp. 695-729.
- (24) Kelley, J. D., and Hovis, F. E., 1993, "A Thermal Detachment Mechanism for Particle Removal from Surfaces by Pulsed Laser Irradiation," *Microelectronic Engineering*, Vol. 20, pp. 159-170.
- (25) Kim, D., Ye, M., and Grigoropoulos, C. P., 1998, "Pulsed Laser Induced Ablation of Absorbing Liquids and Acoustic-Transient Generation," *Applied Physics A*, Vol. 67, pp. 169-181.