

대기중 나노초 펄스레이저 어블레이션의 수치계산

오부국 · 김동식
포항공과 대학교 기계공학과

Numerical simulation of nanosecond pulsed laser ablation in air

Bukuk Oh and Dongsik Kim
Department of mechanical engineering, POSTECH

Abstract

Pulsed laser ablation is important in a variety of engineering applications involving precise removal of materials in laser micromachining and laser treatment of bio-materials. Particularly, detailed numerical simulation of complex laser ablation phenomena in air, taking the interaction between ablation plume and air into account, is required for many practical applications. In this paper, high-power pulsed laser ablation under atmospheric pressure is studied with emphasis on the vaporization model, especially recondensation ratio over the Knudsen layer. Furthermore, parametric studies are carried out to analyze the effect of laser fluence and background pressure on surface ablation and the dynamics of ablation plume. In the numerical calculation, the temperature, pressure, density, and vaporization flux on a solid substrate are obtained by a heat-transfer computation code based on the enthalpy method. The plume dynamics is calculated considering the effect of mass diffusion into the ambient air and plasma shielding. To verify the computation results, experiments for measuring the propagation of a laser induced shock wave are conducted as well.

Key Words : pulsed laser ablation, plume dynamics, numerical simulation, plasma

1. 서 론

펄스레이저 어블레이션은 금속, 폴리머 등 다양한 재료의 마이크로 머시닝을 포함

한 각종 응용 분야에 이용되고 있다. 펄스레이저 어블레이션에서 재료의 제거와 플

름의 동적 거동 (plume dynamics) 그 외 다른 관련된 광열적 / 광기계적 현상은 레이저 빔의 특성과 대기 조건과 같은 많은 변수들의 함수이다. 그러므로 어블레이션 과정을 제어하기 위해서는 레이저 플루언스 (fluence), 파장, 펄스 폭 뿐만 아니라 분위기 압력과 대기의 화학적 조성의 적절한 선택이 중요하다. 본 연구에서는 열적 메커니즘에 의한 어블레이션 현상의 수치적 모델을 제안 하였다. 제안된 수치 모델에서는 주위 기체를 포함하여 시편의 열전달, 용융, 증발, Knudsen 층에서의 불연속 조건, 플룸 거동, 그리고 플라즈마 형성을 고려하여 계산이 수행된다. 따라서, 제안된 코드를 이용하면 Table 1 에 나열된 선행 연구들과는 달리 상대적으로 높은 분위기 압력과 플룸의 농도구배의 효과를 고려하여 해석을 수행 할 수 있다.

Table 1 Numerical approaches about the ablation mechanism and plume dynamics

Reference	D/C	P_{amb}	Plasma absorption	β
Vertes ¹⁾	1D1C	0	Considered	0
Peterlongo ²⁾	1D1C	0	Not	0.18
Ho ³⁾	2D2C	0.001	Considered	0.15-0.2
Leboeuf ⁴⁾	1D2C	0	Considered	0
Wood ⁵⁾	1D2C	0-1	Not	0
Kim ⁶⁾	2D1C	1	Not	0.15-0.2
Present work	2D2C	0.001-1	Considered	Variable

P_{amb} : Background pressure [atm]

β : Recondensation ratio

D/C : Dimension/Component

본 연구에서는 레이저 어블레이션에 관한 플루언스와 분위기 압력의 효과를 밝히기 위해서 다양한 변수들에 대한 해석을 수행 하였다. 또한 수치계산을 통해 가장 중요한 변수로서 재응축률 (recondensation ratio) 의 효과를 해석하였다. 한편 수치계산 결과를 검증하기 위해서 실험을 통하여 플룸의 거동을 관측하였고 계산 결과와 비교하였다.

2. 수치적 모델

Fig. 1 은 레이저 펄스 조사에 의한 알루미늄 시편의 열전달과 플룸의 거동에 대한 물리적 개념도를 보여준다. 열확산 방정식 식 (1) 에 의해서 시편의 열전달 및 상변화가 계산되어진다³⁾ (ρ : 밀도, h : 엔탈피, k : 열전도도, T : 알루미늄의 온도, T_{amb} : 분위기온도, a : 흡수계수, R : 반사율, F : 플루언스, x : 시편의 깊이방향 좌표계, t : 시간, J_{ev} : 증발율, 하첨자 '0': 액체금속, 'amb': 분위기).

상변화를 모사하기 위해서 엔탈피 (enthalpy) 를 독립변수로 설정하였다⁷⁾. Fig. 1 에 시간에 따라서 변화하는 레이저 빔 (Nd:YAG, 1064 nm)의 강도 $I(t)$ 를 나타내었다. 빔은 삼각형 펄스로 $t_p = 12$ ns, $t_l = 32$ ns 을 가진다.

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

$$B.C. (x=0): \frac{\partial T}{\partial x} = 0 \quad (1)$$

$$(x=L): T(L,t) = T_{amb}$$

$$I.C. (t=0): T(x,0) = T_{amb}$$

$$x_{int}(t) = \int_0^t \frac{J_{ev}}{\rho_0} dt$$

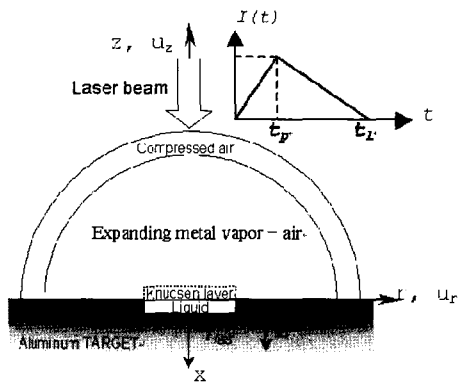


Fig. 1 Physical diagram of pulsed laser ablation and solid heating

금속의 경우 에너지 전달자는 자유전자 (free electron) 와 포논 (phonon) 이다. 전자-전자 충돌과 전자-포논 충돌에 의한 평형도달 시간은 대략 각각 $O(10^{-13}s)$, $O(10^{-11}s)$ 의 크기를 가진다⁸⁾. 또한 조사되는 레이저 빔의 펄스폭은 $\sim ns$ 이기 때문에 자유전자와 포논의 국부의 열역학적 평형 (Local Thermodynamic Equilibrium) 가정이 가능하게 된다. 펄스폭이 펨토초인 경우에는 자유전자와 포논의 평형을 가정 할 수 없다. 그러나 플룸의 거동과 수치계산에 적용될 때 나노초의 경우와 유사한 접근이 가능하다⁹⁻¹¹⁾. 펨토초 레이저 펄스의 경우, 시편의 열전달은 포논과 전자의 온도를 분리하여 고려하도록 수정되어야 한다. 레이저 펄스를 조사하는 동안 전자와 포논간의 열적 평형이 이루어지면 열적 증발에 의해 어블레이션 플룸이 형성되어 대기로 팽창하게 된다¹¹⁾. 플룸 거동을 계산하기 위해 오일러 보존방정식 (Euler conservation equation) 을 사용하게 되며, 이때 플룸내의 전자와 이온의 압력 항들을 고려하기 위해 방정식은 수정되게 된다^{9,10)}. 광학적 그리고 열적 침투 깊이는 각각 10 nm, 1.5 μm 이며, 레이저 빔의 직경 보다 매우 작기 때문에 일 차원 열확산을 가정할 수 있게 된다. 만일 시편이 용융이 되면 표면으로부터 증발이 시작되며, 증발율은 Hertz-Knudsen 식 (2) 에 의해서 얻어진다.

$$j_{ev}(t) = (1 - \beta) \frac{P_0(t) - P_{amb}}{\sqrt{2\pi R_{al} T_0(t)}} \quad (2)$$

여기서 R_{al} 은 알루미늄 증기의 기체상수이고, 증발로 인한 표면의 이동을 고려하기 위해서 이동좌표계, $x_{int}(t)$, 를 사용하였다.

식 (2) 에서 β 는 알루미늄 플룸의 재응축률을 나타낸다. 재응축률은 표면에서 증발한 플룸이 대기 기체와의 충돌을 거치면서 평형에 도달할 때까지 표면에 다시 응축되는 비율을 말한다. 플루언스가 증가하게 되면 매우 짧은 시간에 상변화가 생기게 되므로 액체금속은 과열 상태가 된다. 액체금속의 포화압력은 참고문헌¹²⁾ 에서 얻어지고 열물성치^{12,13)} 들은 온도의 함수로 주어진다. 만일 표면 온도가 일반적인 금속의 임계온도 ($\sim 10^4$ K) 보다 작다면, 주요한 증발 메커니즘은 열적 표면 증발¹⁴⁾ 이 된다. 따라서, 본 연구의 경우 표면 온도는 임계온도 (Critical temperature) 를 넘지 않기 때문에 Hertz-Knudsen 식을 증발 모델로 사용한다.

Fig. 2 에서 처럼 증발된 플룸은 Knudsen 층을 통과할 하면서 온도, 압력, 밀도, 그리고 속도의 불연속적인 변화를 겪게 된다. 이를 수치적으로 모델링 하기 위해 질량, 운동량, 에너지 보존식을 적용하였고 상태방정식과 온도의 함수로 주어지는 엔탈피 식을 도입하였다³⁾.

$$\begin{aligned} u_0 &= \frac{j_{ev}}{\rho_0} = \frac{1 - \beta}{\rho_0} \frac{P_0 - P_{amb}}{\sqrt{2\pi R_{al} T_0}} \\ \rho_1(u_1 - u_{int}) &= \rho_0(u_0 - u_{int}) \\ P_0 + \rho_0(u_0 - u_{int})u_0 &= P_1 + \rho_0(u_0 - u_{int})u_1 \\ h_0 + \frac{1}{2}u_0^2 &= h_1 + \frac{1}{2}u_1^2 \\ P_1 &= \rho_1 R_{al} T_1 \\ h_1 &= h_0 + c_p(T_1 - T_0) \end{aligned} \quad (3)$$

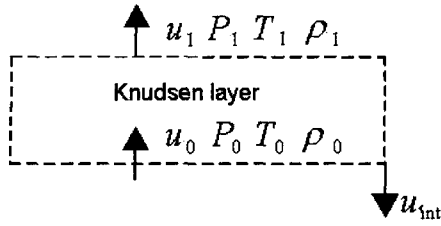


Fig. 2 The change of velocity, pressure, temperature, and density through the Knudsen layer (Subscript: '0' for liquid, '1' for vapor, and 'int' for interface).

여기서 c_p 는 알루미늄 플룸의 정압비열이다. 식 (3)의 방정식의 수보다 미지수의 개수가 한 개 많기 때문에 이 식을 풀기 위해서 Knudsen 층 끝에서 플룸의 속도를 음속으로 가정하게 되면 재용축률 $\beta=0.18$ ¹⁵⁾을 얻게 된다. 그러나 이 가정은 진공에 가깝다는 가정하에서 유도되었으며 본 연구의 경우처럼 분위기 압력이 높은 경우와는 분명히 다르다. 따라서, 본 연구는 재용축률에 대한 해석을 위해서 분위기 압력, 플루언스, 그리고 재용축률과 같은 파라미터들을 변화시키면서 수치 계산 하였다.

오일러 보존 방정식은 플룸의 거동을 나타내기 위해서 식 (4)와 같이 나타낸다³⁾.

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{V}) &= 0 \\ \rho \frac{\partial \vec{V}}{\partial t} + \rho (\vec{V} \cdot \nabla) \vec{V} &= -\nabla P \\ \rho \frac{\partial e}{\partial t} + \rho (\vec{V} \cdot \nabla) e &= -P (\nabla \cdot \vec{V}) \\ P &= (\gamma - 1) \rho e \end{aligned} \tag{4}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \gamma) + \nabla \cdot (\rho \gamma \vec{V}) = 0 \tag{5}$$

여기서 \vec{V} , P , $e=c_v T$, 그리고 c_v 들은 각각

속도벡터, 압력, 내부에너지, 정적비열을 나타낸다. 알루미늄 플룸에 대하여 단위자 분자를 가정하였으며 그 경우 비열비 γ 는 5/3이 된다. 어블레이션 된 알루미늄 플룸은 공기로 가득 찬 대기에 들어가게 되고, 또 플룸이 진행해 나가면서 공기와 혼합되게 된다. 따라서 유동장은 증발된 플룸과 주위 공기의 혼합 효과를 고려하여 계산되어야 한다. 식 (5)에서 밀도 ρ 는 공기와 알루미늄 플룸의 전체 밀도를 말하며, 혼합물의 물성치는 알루미늄 플룸의 질량분율 ($y \equiv \rho_{al} / \rho$)에 의해서 계산된다.

레이저 플루언스가 플라즈마 생성 쓰레스홀드 (plasma ignition threshold)를 넘게 되면, 플룸 내에서 레이저 흡수에 의한 이온화 (ionization)가 일어나 플라즈마가 형성된다. 플라즈마의 이온화도는 Saha¹⁾식에 의해서 구해지며 플라즈마 흡수계수 (plasma absorption coefficient) α_p [1/m]는 식 (6)과 같이 나타낸다¹⁶⁾.

$$\alpha_p = 1.39 \times 10^{-35} n_e n_i [1 - \exp(-13522/T)] \tag{6}$$

n_e , n_i 는 전자와 이온의 밀도이다. 레이저 빔의 플라즈마 흡수는 전자에 의한 역 제동복사 (inverse Bremsstrahlung)에 의해서 일어나며, 에너지를 흡수한 전자는 다시 이온과 충돌하여 플라즈마의 온도를 증가시키게 된다. 알루미늄 플룸의 이온화 에너지 (6 eV)는 광자의 에너지 (1.2 eV)보다 작기 때문에 광이온화 (Photo ionization)에 의한 플라즈마 흡수 메커니즘은 무시할 수 있다.

플룸의 거동을 수치적으로 모사하기 위해서 상용 전산유체역학 패키지, STAR-CD (version 3.15),를 사용하였다. 높은 플루언스 영역에서는 플라즈마의 형성으로 인해서 조사되는 빔이 플라즈마에 의해 흡수되어 시편에 도달하는 에너지의 양을 변화시키게 된다. 그래서 시편의 열전달과 플

플룸의 거동은 분리하여 계산할 수 없게 된다. 이를 해결하기 위해, 처음 계산에서 시편과 플룸에 대하여 각각 따로 계산하고 플라즈마 흡수를 고려한 수정된 빔 프로파일을 이용하여 다시 시편에 대한 열전달을 계산하는 반복적인 방법을 사용하였다. 몇 번의 반복 후에 수렴하는 것을 확인 할 수 있었다.

3. 실험

Fig. 3 은 플룸과 충격파의 전파를 측정하기 위한 광굴절법 (Probe beam deflection method) 실험장치를 보여준다. 주어진 시간과 위치에서 He-Ne 프로브 빔의 굴절로 인해서 광량의 변화가 생기게 되고 이것으로 충격파와 플룸이 도착하였음을 알 수 있게 된다¹⁷⁾. 실험은 알루미늄 시편과 프로브빔 사이의 거리를 0.5 에서 3.0 mm 까지 변화시키면서 수행되었다. 렌즈와 시편은 같은 기판 위에 고정되어 2 축 마이크로 스테이지에 의해서 위치가 제어된다. 레이저 빔의 직경 ($2r_{las}$) 은 1 mm 이다.

4. 결과 및 토의

Fig. 4는 여러 레이저 플루언스에서 표면 온도의 시간에 따른 변화를 보여준다. 그림에서 급격한 가열 ($\sim 10^{11}$ K/s) 로 인해서 표면의 온도가 비등점 (2792 K) 을 넘어 과열 된 것을 볼 수 있다. 또한 용융점 (933K) 에서 상변화에 의해 온도가 변하지 않는 곳이 관찰되었다. 최대온도를 보면, 플루언스와 최대온도의 증가량이 비례하고 있음을 볼 수 있다.

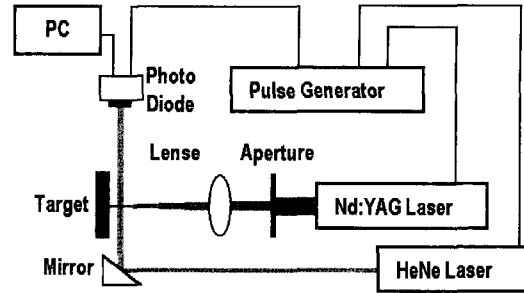


Fig. 3 Experimental setup.

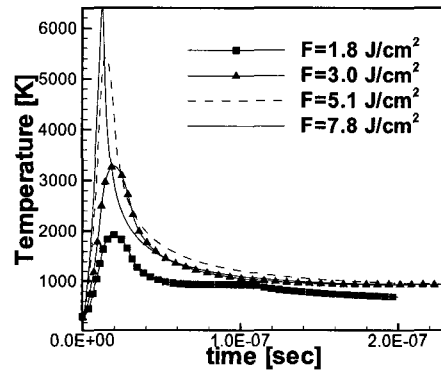
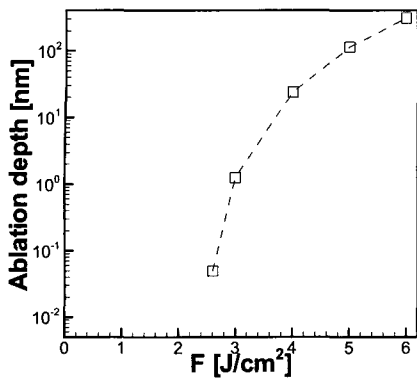
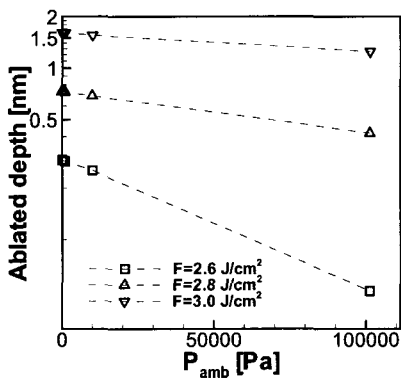


Fig. 4 Temporal variation of the target surface temperature at different fluences with plasma shielding.

Fig. 5 (a) 는 플루언스를 증가시켰을 때의 어블레이션 깊이를 보여주고 있다. Fig. 5 (b) 에서 보듯, 분위기 압력에 따른 어블레이션 깊이의 변화는 매우 작으며, 특히 플루언스가 커질수록 더욱 작아진다. 식 (2) 를 보게되면, 증발률은 액체의 포화압력과 분위기 압력의 차이에 비례함을 알 수 있다. 그러므로, 높은 플루언스 영역에서는 상대적으로 분위기 압력이 작아지기 때문에 분위기를 변화시켜도 어블레이션 깊이에는 큰 영향을 미치지 않음을 알 수 있다. 또한 낮은 플루언스 즉 금속의 증기압이 그다지 높지 않게 되는 영역에서는 분위기 압력의 영향에 민감하게 되는 것을 알 수 있다.



(a)



(b)

Fig. 5 Variation of ablation depth (a) with fluence ($P_{amb} = 1\text{atm}$) and (b) background pressure.

Knudsen 층 끝 단에서, 알루미늄 플룸의 압력, 속도, 온도, 그리고 밀도의 변화를 나타내면 Fig. 6 과 같다. 증기온도는 표면의 온도보다 약 0.9배 작게 나오고, 속도는 약 2배가 증가하지만 해당온도에서의 음속 (speed of sound) 을 넘지는 않는다.

Fig. 7 은 공기와 알루미늄 플룸의 밀도의 분포를 수직축의 방향으로 각기 다른 압력에서 보여주고 있다. 알루미늄 플룸은 충격파 보다 낮은 속도로 전파됨을 볼 수 있다. Knudsen 층 끝 단에서 압력 (예를 들어, 5.1 J/cm^2 에서 $\sim 100\text{ atm}$) 이 분위기 압력 보다 매우 큼에도 불구하고, 플룸의 전파는 분위기 압력의 영향을 받음을

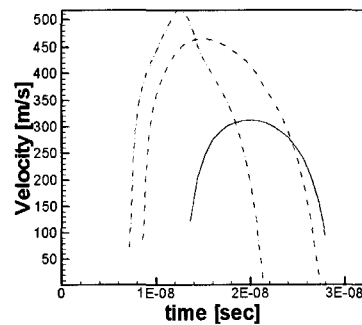
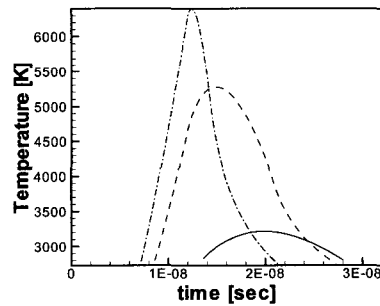
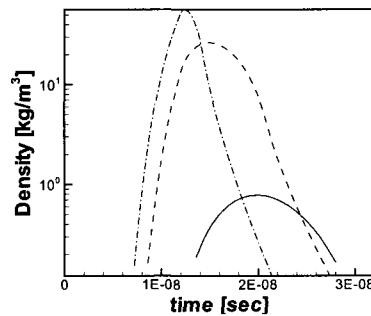
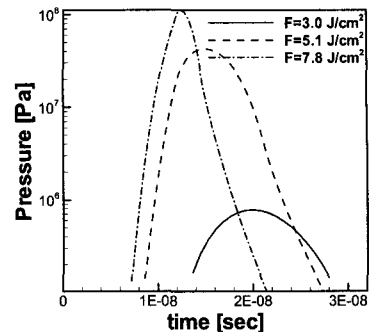


Fig. 6 Variation of pressure, density, temperature, and velocity at the edge of the Knudsen layer with considering plasma shielding.

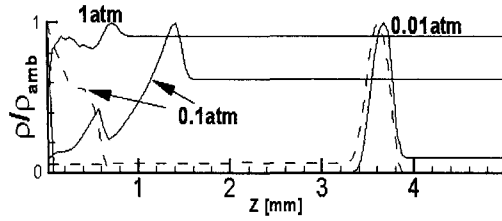


Fig. 7 Air (solid line) and plume (dashed line) density profiles along the z axis for different ambient pressures ($F=3.0 \text{ J/cm}^2$, $\beta=0.18$).

볼 수 있다. 또한 분위기 압력이 높아 질수록 벗어 날수록 플룸과 공기의 피크(peak) 간격이 차이가 남을 볼 수 있다. 이로부터 비교적 높은 주위 압력 하에서는 2 성분의 효과를 고려하여 어블레이션 현상이 수정되어야 한다고 말할 수 있다.

Fig. 8 (a) 와 (b) 는 플룸의 거동에 대한 수치계산과 실험결과를 비교하여 보여 준다. 반복을 계속함으로써 실험치에 근접함을 볼 수 있다. 수정된 빔 프로파일을 Fig. 8 (d) 에서 보여 주듯이 시편과 플룸의 반복계산은 3번의 반복을 거친 후 수렴된다. Fig. 8 (d) 의 경우, $F=5.1 \text{ J/cm}^2$, 반치전폭=16 ns 이므로 빔에 의한 단위 면적당 에너지 전달률은 $O(10^8) \text{ W/cm}^2$ 에 이르지 만 펄스폭 동안에 플룸의 온도가 5000 K 에 이른다 고 보았을 때 $\sigma T^4 \sim O(10^3) \text{ W/cm}^2$ (σ :스테판 볼츠만 상수) 에 지나지 않는다. 따라서 플룸에서 방출되는 에너지를 무시할 수 있다. Fig. 8 (c) 에서는 5.1 J/cm^2 에서 플라즈마 흡수를 고려하지 않고 여러 재응축률 값에 대하여 충격파 전파를 보여주고 있다. 따라서, 플룸의 거동은 증발모델과 상당한 관련이 있음이 분명하다. Fig. 8 (d) 은 7.8 J/cm^2 에서는 플라즈마 흡수에 의한 레이저 빔의 프로파일(profile)의 변화를 보여준다. 계산된 플라즈마 흡수율은 플루언스 5.1 과 7.8 J/cm^2 에 대하여 각각 27, 56 % 로 나타났다. Fig. 9 는 다른 재응축률 하에서 Knudsen 층 끝 단의 속도와 압력의 변화를 보여주고 있다. 압력, 온도, 밀도의 변

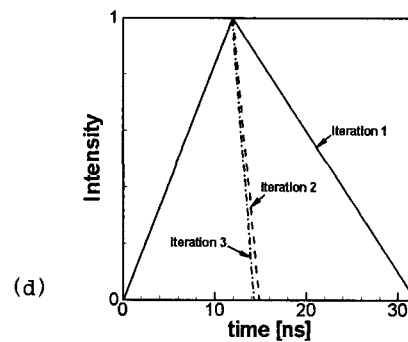
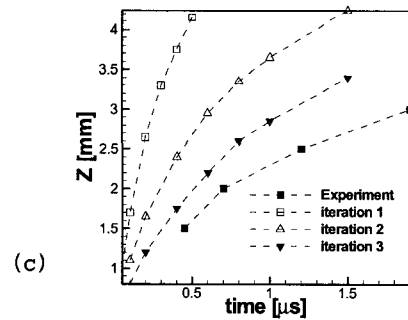
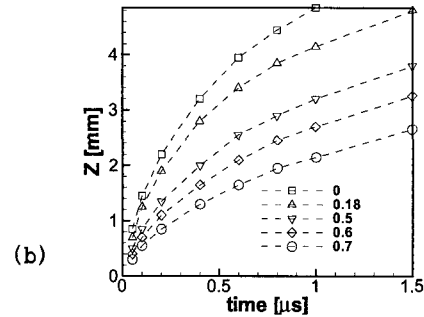
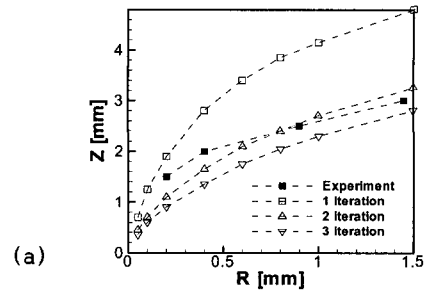


Fig. 8 propagation of the shock wave (a) at $F=5.1 \text{ J/cm}^2$, $\beta=0.18$, and (b) at $F=7.8 \text{ J/cm}^2$, $\beta=0.18$, (c) for different recondensation ratios, and (d) the change of laser-intensity profile by plasma absorption.

화는 상대적으로 작지만 속도의 변화는 재응축률의 변화에 따라 민감하다는 것을 알 수 있다.

5. 결 론

본 연구에서는 상용패키지를 부분적으로 이용한 수치해석 모델을 제안하여 고압 분위기의 효과를 고려한 펄스레이저 어블레이션 현상의 해석을 수행하였다. 특히 일반적인 금속의 열적 어블레이션 현상에서 분위기 압력, 레이저 플루언스, 증발모델 (재응축률)의 효과를 분석하였다. 연구결과, 재응축률과 분위기 압력이 플룸의 동적 거동에 미치는 영향은 상당히 커서 Knudsen 층 끝 단에서 마하수를 1로 가정하는 것은 분위기 압력이 높은 경우 적절하지 않음을

알 수 있었다. 또한 어블레이션 량에 대한 분위기 압력의 효과는 특히 낮은 플루언스 영역에서 두드러졌다.

감사의 글

본 과제는 마이크로 열시스템 ERC의 지원으로 수행되었다.

참고문헌

1. A. Vertes, P. Juhasz, M.D. Wolf, R. Gijbels: *Int. J. Mass Spectrometry and Ion Processes*, **94**, (1989) 63.
2. A. Peterlongo, A. Miotello, R. Kelly: *Phys. Rev. E*, **50**, (1994) 4716.
3. J.R. Ho, C.P. Grigoropoulos, J.A.C. Humphrey: *J. Appl. Phys.*, **79**, (1996) 7205.
4. J.N. Leboeuf, K.R. Chen, J.M. Donato, D.B. Geohegan, C.L. Liu, A.A. Puzetzky, R.F. Wood: *Appl. Surf. Sci.*, **96-98**, (1996) 14.
5. R.F. Wood, J.N. Leboeuf, D.B. Geohegan, A.A. Puzetzky, K.R. Chen: *Phys.Rev. B*, **58**, (1998) 1533.
6. D. Kim, M. Ye, C.P. Grigoropoulos: *Appl. Phys. A*, **67**, (1998) 169.
7. N. Shamsundar, E.M. Sparrow: *J. Heat Transfer*, **97**, (1975) 333.
8. A. Majumdar: "Microscale energy transport" edited by C.L. Tien, A. Majumdar, F.M. Gerner, (Publisher, Taylor & Francis, 1998) pp.28.
9. F.Korte, S. Nolte, B.N. Chichkov, T. Bauer, G. Kamlage, T. Wagner, C. Fallnich, H. Welling: *Appl. Phys. A*, **69**, (1999) S7.

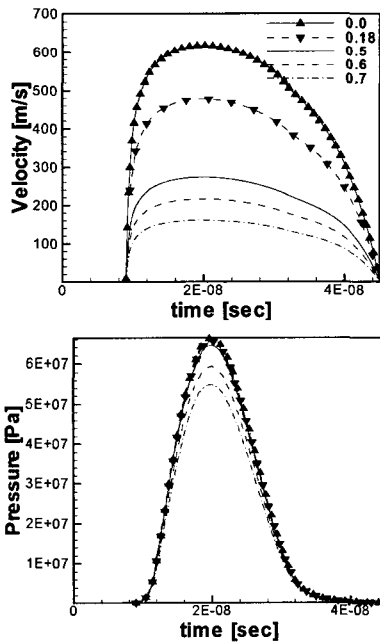


Fig. 9 Velocity and pressure at the edge of the Knudsen layer for different recondensation ratios without plasma shielding ($F=5.09 \text{ J/cm}^2$).

10. H. Furukawa, M. Hashida: Appl. Surf. Sci., **197-198**, (2002) 114.
11. N.M. Bulgakova, I.M. Bourakov: Appl. Surf. Sci., **197-198**, (2002) 41.
12. T. Iida, R.I.L. Guthrie: "The Physical Properties of Liquid Metals", (Publisher, Clarendon press-Oxford, 1998).
13. J.H. Weaver, H.P.R. Frederikse: "Handbook of Chemistry and Physics, 81st" edited by D.R. Lide, (Publisher, CRC press, 2000-2001).
14. N. Rykalin, A. Uglov, A. Kokora: "Laser Machining and Welding", (Publisher, Pergamon press, 1975).
15. C.J. Knight: AIAA J., **17**, (1979) 519.
16. Z. Zhang, Z. Han, G.S. Dulikravich: J. Appl. Phys., **90**, (2001) 5889.
17. S.H. Jeong, R. Greif, R.E. Russo: J. Phys. D, **32**, (1999) 2578.