

높은 플루언스 영역에서 상폭발에 의한 금속의 펄토초 레이저 어블레이션과 크레이터 형성 해석

Fs laser ablation of metals and crater formation by phase explosion in high-fluence regime

포항공과대학교 기계공학과 오부국, 김동식
한국기계연구원 나노공정그룹 김재구, 이재훈

I. 서론

극초단 레이저를 이용한 재료의 어블레이션은 나노, 피코초 펄스레이저에 비해서 상대적으로 작은 열영향부(heat affected zone, HAZ)를 가지기 때문에 다양한 금속들을 정밀가공 하는데 활용될 수 있다¹⁾ 펄토초 펄스에 의한 가공형상 예측을 위해 몇몇 어블레이션 모델들이 제안되었고, 수치계산이 수행되어 왔다^{2,4)} 그러나 다양한 물리현상들이 복합적으로 나타나는 복잡한 어블레이션을 수치적으로 모델링하기 어렵기 때문에 수치계산은 주로 1차원에 국한되어 수행되어 가공면의 형상을 예측하는 데 한계를 지녔다 또한 레이저 마이크로머시닝의 실용적인 응용 및 이론적 모델의 검증에 위한 실험 자료들이 매우 부족한 상태이다 특히 Ni는 실제 레이저 공정산업에서 자주 사용되고 있음에도 불구하고 펄토초 어블레이션 실험결과는 매우 드문 실정이다⁵⁾ 본 연구에서는 펄토초 펄스에 의한 어블레이션 현상과 표면에 형성된 크레이터(crater) 형성을 이론적으로 예측하기 위해 2차원 수치해석 모델을 제안하였다 그리고 Ni를 대상으로 실험을 수행하여 이론 모델의 적합성을 검증했다 수치해석에서 전자와 격자의 온도의 비평형 상태를 고려하기 위해서 2온도(two-temperature) 모델을 이용하였으며²⁾ 모재의 어블레이션 조건으로는 상폭발(phase explosion) 모델을 사용했다 따라서 상폭발이 일어나기 위해서는 격자의 온도가 임계온도에 접근해야 하기 때문에 이 모델은 한계 플루언스를 넘어서는 비교적 높은 플루언스 영역에서 효과적이다 레이저 플루언스가 다양한 어블레이션 현상에 미치는 효과를 관찰하였으며 특히 어블레이션 양, 크레이터 형성, HAZ에 주안점을 두고 해석을 수행했다 Ni 시편에 대하여 근적외선 영역의 파장을 가지는 T1 Sapphire 펄토초 레이저로 실험이 수행되었고 계산결과와 비교하였다

II. 이론 모델링

펄토초 펄스에 의한 어블레이션 기작은 증발, 상폭발, 정전기적 어블레이션과 파쇄(spallation) 등으로 분류할 수 있다^{6,7)} 이 중 상폭발 모델은 비교적 높은 플루언스 영역에서 금속의 펄토초 레이저 어블레이션 기작으로 알려져 왔다^{3,7)} 본 연구에서는 2온도 모델을⁸⁾ 2차원 원통 좌표계에 대해 식(1)과 같이 구현하였다 격자의 열전도도는 전자열전도도(k_e)보다 매우 작기 때문에 식(1)에서 무시하였다(t 시간, r 반경좌표, z 시편 표면으로부터의 깊이좌표). 입사된 빔 에너지는 inverse bremsstrahlung에 의해 전자가 주로 흡수하며, 전자열용량(C_e)가 격자열용량(C_l)보다 매우 작기 때문에 전자온도(T_e)는 초기에 약 10 eV 까지 증가한다

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(k_e r \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(k_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - G(T_e - T_i) + S(r, z, t) \quad (1)$$

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = G(T_e - T_i)$$

고온의 전자들은 격자들과의 충돌을 거치게 되면서 격자온도(T_i)를 증가시킨다(G 에너지 결합상수) Cu와 Ni에 대한 전자와 격자에 대한 열물성 값들은 각각 참고문헌 [4]와 [9]로부터 인용하였다 열 생성항 S 는 전자의 평균자유행로에 의한 ballistic 깊이를 고려하였다¹⁰⁾ 또한 빔 에너지의 공간분포는 가우시안과 평면(flat top) 형태로 나누어 해석하였다(R 반사율, α 흡수계수, E 레이저에너지, τ_w FWHM, r_w 빔반경, F 플루언스)

$$S(r, z, t) = \frac{(1-R)\alpha E \sqrt{2.77}}{\pi^{1.5} \tau_w r_w^2} \exp \left[-\alpha z - \left(\frac{r}{r_w} \right)^2 - 2.77 \left(\frac{t}{\tau_w} \right)^2 \right] \quad (2)$$

$$S(r, z, t) = \frac{(1-R)\alpha F \sqrt{2.77}}{\pi^{0.5} \tau_w} \exp \left[-\alpha z - 2.77 \left(\frac{t}{\tau_w} \right)^2 \right]$$

계산에서 ballistic 깊이는 Cu와 Ni에 대해 각각 70, 11 nm을 사용하였다¹⁰⁾ 단일 펄스에 의한 어블레이션의 경우 반사율을 이론적으로 예측 할 수 있지만 다중펄스를 사용하는 경우에는 시편의 표면 상태가 펄스마다 변화한다^{11,12)} 따라서 계산결과와 실험결과와의 편차가 최소화 되도록 반사율을 조정하였으며, 이렇게 예측된 반사율 값이 기존의 이론, 실험을 통해 알려진 값들과 잘 일치함을 볼 수 있었다⁵⁾ 어블레이션 조건으로는 스피노달(spinodal) 한계를 사용하였다 스피노달 한계는 물질의 열역학적 불안정성을 나타내는 지표로서 한계온도 T_{sp} 는 $\partial p / \partial v|_T = 0$ 에 의해서 정의된다 따라서 격자의 온도가 스피노달 한계에 도달하게 되면 상폭 발에 의해 순간적으로 모재가 제거 된다고 가정한다 그러므로 표면 좌표 \vec{r}_{surf} 는 $T_i(\vec{r}_{surf}) = T_{sp}$ 과 같이 정의 할 수 있다 과열상태인 금속액체의 상태방정식이 잘 알려져 있지 않지만, 일반적으로 스피노달 한계는 $0.8T_{cr} \sim 0.9T_{cr}$ ¹³⁾ 의 범위를 갖는다 따라서 본 연구에서는 스피노달 한계 온도를 $0.9T_{cr}$ 로 가정하였다(T_{cr} 열역학적 임계온도)

III. 실험

실험은 Ni 시편을 대상으로 수행하였으며 T1 Sapphire 레이저(파장 $\lambda=800$ nm, FWHM=220 fs)를 사용하였다 실험에 이용된 fs 레이저 빔은 공간적으로 가우시안 분포를 가진다($2r_w=10 \mu\text{m}$) 대물렌즈(50 \times)를 사용하여 빔의 초점을 조절하였고 펄스에너지는 200 에서 2000 nJ 까지 변화시키면서 실험을 하였다 실험은 대기 중에서 수행되었고 100개의 펄스에 의해 생성된 크

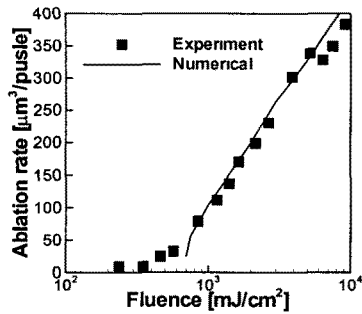


Figure1. Ablation rate of Cu in vacuum (50 pulses)

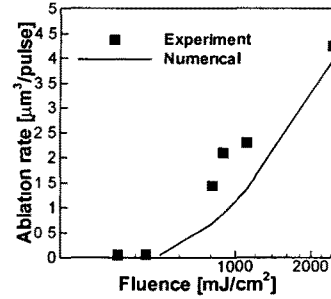


Figure2. Ablation rate of Ni (100 pulses)

레이터의 형상을 분석하였다 가공면의 형상을 측정하기 위해서는 LSP(laser scanning profilometer)와 SEM(scanning electron microscope)이 사용되었다

IV. 결과 및 고찰

그림1은 Cu 시편에 150 fs 펄스레이저를 평면빔으로 조사할 때의 어블레이션 양상을 보여주고 있다 그림에서 계산($R=0.5$)결과와 실험결과가⁸⁾ 잘 일치하고 있음을 볼 수 있다 특히 약 700 mJ/cm^2 이상의 고프루언스 영역에서 잘 일치하는 것을 관찰 할 수 있다 이러한 결과는 고프루언스와 저플루언스 영역을 나누는 임계 플루언스는 격자온도의 과열도와 관련이 있으며, 격자온도가 스피노달 온도에 접근하는 경우 상폭발 모델이 어블레이션을 예측하는데 있어 효과적임을 말해준다 그림1의 실험은 진공 하에서 수행되었기 때문에 대기 중에서 수행된 결과와는 정량적으로 다를 것이지만 정성적인 양상이 잘 일치한다⁹⁾. 유사한 결과를 그림2의 Ni 시편에 대해서 얻을 수 있었다 그림2로부터 계산결과($R=0.45$)가 대기 중에서 수행된 실험결과와 비교적 잘 일치하고 있음을 알 수 있었다 여기서도 어블레이션 한계플루언스 영역보다는 고프루언스 영역에서 특히 더 잘 일치하고 있음을 볼 수 있다 따라서 금속의 펄초 어블레이션은 한계플루언스 영역과 상폭발 영역 두 부분으로 나눌 수 있음을 알 수 있다 Ni의 측정된 어블레이션 한계 플루언스는 약 200 mJ/cm^2 정도로 나타났으며 근사적인 예측값(밀도 \times 증발잠열 \times 전자침투깊이 / $(1-R) \sim 250 \text{ mJ/cm}^2$)과도 비교적 잘 일치한다¹⁴⁾ 그림3은 플루언스에 따라서 Ni 시편에 가공된 크레이터의 형상을 보여주고 있다 가우시안빔에 의해서 2차원 형상을 가지는 크레이터가 생성되었다 따라서 표면의 형상을 예측하기 위해서는 2차원 이론 모델이 필요함을 알 수 있다 그림4(a)에 크레이터 형상에 대한 실험결과와 계산결과를 비교하였다 빔의 끝단보다 중심부에서 상대적으로 높은 에너지 밀도를 가지게 되므로 계산된 크레이터 형상과 측정된 형상이 중심부에서 잘 일치함을 볼 수 있다 이러한 양상은 레이저 에너지가 높아질수록 고프루언스 영역이 넓어지게 되면서 점점 두드러졌다 그림4(b)는 평면빔에 의한 크레이터 형상의 계산결과를 보여준다 평면빔의 직경은 가우시안빔의 직경과 같은 $10 \mu\text{m}$ 이다 같은 에너지를 조사할 경우 최대 어블레이션 깊이는 중심부에서 더 많은 에너지가 집중된 가우시안 빔이 더 컸다 플루언스가 높아질수록 전체적인 어블레이션량은 모두 비슷하게 나타났다 그러나

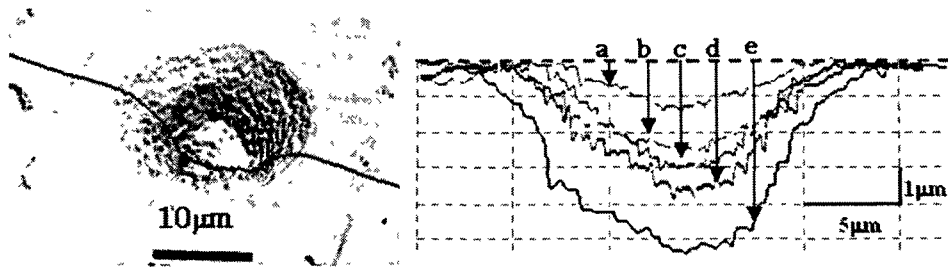


Figure 3. Surface topography at 2420 mJ/cm² (left) and profiles (right) obtained after 100 pulses at (a) 440, (b) 810, (c) 900, (d) 1110, and (e) 2420 mJ/cm²

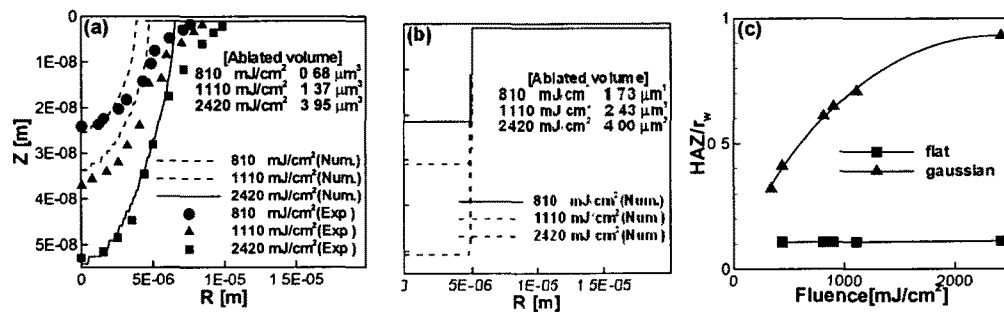


Figure 4. Measured (symbols) and calculated (lines) crater profiles in Ni (a) by a Gaussian beam and (b) by a flat-top beam. The normalized lateral HAZ is displayed in (c)

낮은 플루언스 영역에서는 평면빔에 의한 어블레이션 양이 더 커짐을 알 수 있다. 그림 4(c)는

두가지 공간 에너지 분포에 대한 HAZ의 크기변화를 보여주고 있다. 여기서 HAZ는 빔 직경 바깥 영역 중에서 격자의 온도가 용융점을 넘어선 부분으로 정의하였다. 가우시안 빔의 직경은 피크지점으로부터 강도가 $1/e^2$ 배 되는 지점으로 정의한다. HAZ의 크기는 가우시안 빔의 경우 플루언스가 증가함에 따라 증가하다가 포화되었으나, 평면 빔의 경우 플루언스에 따라 거의 변화하지 않았다. 가우시안 빔의 HAZ는 낮은 플루언스 영역에서도 대략 $O(1\mu\text{m})$ 임을 볼 수 있다. 이러한 결과는 기존의 연구결과 중 가우시안 빔직경 $17\mu\text{m}$ 의 빔(150 fs, 400 nm, 10 nJ)으로 200 nm 급 구멍을 가공할 때 HAZ가 약 $1\mu\text{m}$ 로 나타난 것과 대체적으로 잘 일치한다¹⁾

IV. 결론

본 연구에서는 펨토초 펄스 레이저를 이용한 금속의 어블레이션과 크레이터 형성에 대하여 2차원 상폭발 모델을 도입하여 수치계산을 수행하였다. 또한 Ni 시편에 대한 펨토초 어블레이션 실험을 수행하여 어블레이션 양과 크레이터 형상을 측정하였다. 계산과 실험결과를 비교한 결과 상폭발 모델을 통해서 고평루언스 영역에서 금속의 펨토초 어블레이션을 비교적 정확히 예측할 수 있음을 보였다. 특히, 격자의 온도가 열역학적 임계값 근처까지 과열되는 높을 플루언스 영역에서 제안된 모델이 매우 효과적임을 알 수 있었다. 한계플루언스 영역까지 포함하는

보다 정확한 어블레이션 형상 예측을 위해서는 정전기 효과와 재료의 열탄성 거동을 포괄하는 보다 포괄적인 모델이 개발되어야 할 것이며 이에 대한 연구가 진행 중이다

후기

본 연구는 핵심연구 개발사업(첨단레이저-재료 반응 모사용 전산해석 기법 개발) 지원으로 수행되었다

참고문헌

- 1 K Venkatakrishnan *et al*, Sub-micron ablation of metallic thin film by femtosecond pulse laser, *Optics & Laser Tech* **34**, 575 (2002)
- 2 F Korte *et al*, Sub-diffraction limited structuring of solid targets with femtosecond laser pulses, *Optics Express* **7**, 41 (2000)
- 3 N M Bulgakova *et al*, Phase explosion under ultrashort pulsed laser ablation modeling with analysis of metastable state of melt, *Appl Surf Sci* **197-198**, 41 (2002)
- 4 C Schafer *et al*, Metal Ablation by Picosecond Laser Pulses A Hybrid Simulation, *Physical Review B* **66**, 115404-1 (2002)
- 5 S Preuss *et al*, Sub-Picosecond UV Laser Ablation of Metals, *Applied Physics A* **61**, 33 (1995)
- 6 T E Itina *et al*, Numerical study of ultra short laser ablation of metals and laser plume dynamics, *Appl Phys A* **79**, 1089 (2004)
- 7 J K Chen *et al*, Modelling of Ultrashort Laser Ablation of Gold Films in Vacuum, *Journal of Optics A Pure and Applied Optics* **5**, 168 (2003)
- 8 C Momma *et al*, Precise Laser Ablation with Ultrashort Pulses, *Applied Surface Science* **109-110**, 15 (1997)
- 9 J Hohlfeld *et al*, Electron and Lattice Dynamics Following Optical Excitation of Metals, *Chemical Physics* **251**, 237 (2000)
- 10 A D Bernardo *et al*, High-intensity ultrashort laser-induced ablation of stainless steel foil targets in the presence of ambient gas, *Laser and Particle Beams* **21**, 59 (2003)
- 11 J Bonse *et al*, The Precision of the Femtosecond-Pulse Laser Ablation of TiN Films on Silicon, *Applied Physics A* **69**, S399 (1999)
- 12 M Von Allmen, *Laser-Beam Interactions with Materials-Physical Principles and Applications* (Springer-Verlag, Berlin, 1987), Vol 2, p 43
- 13 R Kelly *et al*, Comments on Explosive Mechanisms of Laser Sputtering, *Applied Surface Science* **96-98**, 205 (1996)
- 14 S Nolte *et al*, Ablation of Metals by Ultrashort Laser Pulses, *Journal of Optical Society of America B* **14**, 2716 (1997)