

УДК 535.21, 536.37

## Численное моделирование воздействия излучения импульсного $\text{CO}_2$ -лазера на мишень из тугоплавких оксидов

В.В. Лисенков, В.В. Осипов\*

Учреждение Российской академии наук Институт электрофизики Уральского отделения РАН  
620016, г. Екатеринбург, ул. Амундсена, 106

Поступила в редакцию 12.10.2011 г.

Исследовалась динамика воздействия излучения мощного импульсно-периодического  $\text{CO}_2$ -лазера на мишени из иттрий-алюминиевого граната (YAG) и оксида циркония, стабилизированного иттрием (YSZ). Лазерный импульс имел следующие параметры: энергия 1 Дж, длительность 250 мкс по полувысоте, пиковая мощность 7 кВ, частота повторения импульсов 500 Гц. Исследования проводились с помощью численной 3D-модели, включающей в себя уравнения теплопроводности и движения жидкого расплава. Расчеты позволили проследить динамику формирования кратера и бруствера, остывания жидкого расплава и перераспределения энергии между фазами. Расчеты позволили обосновать наблюдаемую в эксперименте эффективность испарения мишеней из YAG и YSZ на уровне ~ 10%.

*Ключевые слова:* лазерное излучение, оксиды, нанопорошки, мишень, кратер; laser radiation, oxides, nanopowders, target, crater.

На сегодняшний день исследования в области нанотехнологий считаются наиболее приоритетными. Необходимой составляющей этих исследований является синтез нанопорошков и других нанобъектов.

Среди многообразия различных технологий синтеза нанопорошка метод лазерной абляции занимает достойное место. Данная технология нашла достаточно широкое применение прежде всего благодаря универсальности (возможности получать нанопорошки различного состава) и высокому качеству получаемого нанопорошка.

В частности, применение мощного и высокоэффективного  $\text{CO}_2$ -лазера «ЛАЭРТ» [1] позволило получать разнообразный по составу нанопорошок с хорошей производительностью [2]. Разработка технологии синтеза нанопорошка с помощью данного лазера стимулировала проведение цикла исследований по взаимодействию лазерного излучения с веществом и динамике лазерного факела, результаты которых были опубликованы ранее [3–5].

В этих исследованиях для достижения высокой производительности получения нанопорошков длительность импульса излучения на два порядка превышала характерную длительность импульса ТЕА  $\text{CO}_2$ -лазеров, а пиковая мощность выбиралась несколько ниже порога формирования оптического пробоя [6]. В данных условиях известные аналитические модели (см. обзоры [7, 8]), развитые для анализа процессов взаимодействия лазерного излучения с веществом, оказались не совсем пригодными из-за особенностей импульса излучения лазера «ЛАЭРТ» (рис. 1).

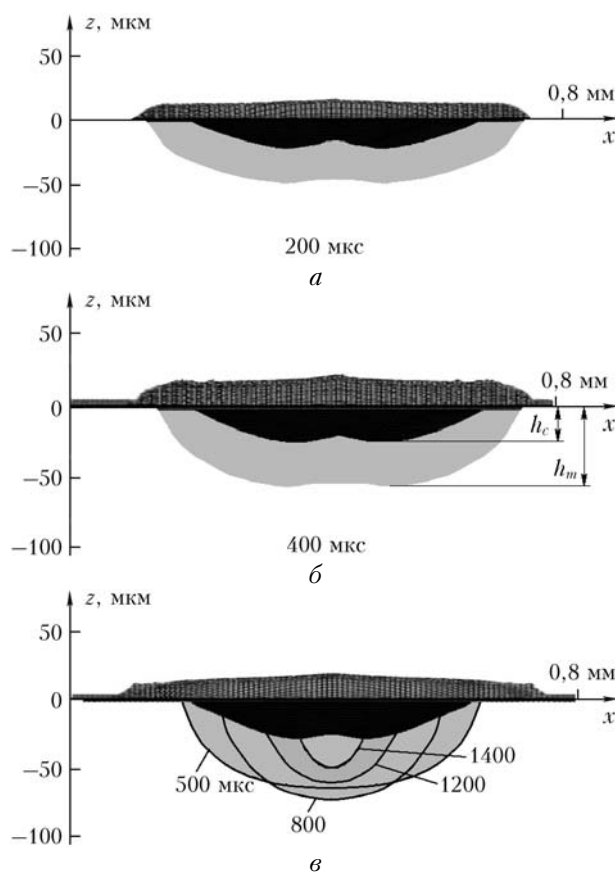


Рис. 1. Формирование кратера в YAG-мишени. Проекция в плоскости  $zox$ . Для наглядности масштаб по оси  $z$  увеличен в 2 раза. Область расплава внутри мишени показана серым цветом, а область кратера темным;  $h_c$  — глубина кратера,  $h_m$  — глубина расплава (б)

\* Василий Викторович Лисенков (lisenkov@iep.uran.ru); Владимир Васильевич Осипов (osipov@iep.uran.ru).

При такой динамике и пространственной структуре излучения тепловые процессы будут резко неоднородны в пространстве и во времени. Поэтому фронт абляции не будет плоским и движущимся с постоянной скоростью, что является основным приближением аналитических моделей для длинных лазерных импульсов или непрерывного режима. С другой стороны, импульс нашего лазера недостаточно короткий, чтобы можно было пренебречь теплопроводностью и применить модели, развитые для коротких и сверхкоротких лазерных импульсов. Таким образом, единственно возможным способом расчета в нашем случае является создание численной модели, подобной развитым в работах [9] или [10], оптимизированной для параметров имеющегося лазерного импульса.

Наша задача заключалась в численном моделировании совокупности термо- и гидродинамических процессов, протекающих при воздействии лазерного излучения на мишени из тугоплавких оксидов. При этом основное внимание уделяется исследованию динамики и энергетике процессов плавления и испарения мишеней, а также образования брус-тера на их поверхности вокруг кратера.

Основу модели составляет трехмерное уравнение теплопроводности

$$c(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(\lambda(T) \nabla T) + Q, \quad (1)$$

дополненное уравнениями движения жидкого расплава [11]:

$$\operatorname{div}(\mathbf{v}) = 0; \quad (2)$$

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\frac{1}{\rho} \nabla P + \nu \Delta \mathbf{v}, \quad (3)$$

где  $\mathbf{v}$  – скорость движения расплава;  $c$  – объемная теплоемкость;  $\lambda$  – коэффициент теплопроводности;  $Q$  – внутренний источник тепловыделения;  $\rho$  – плотность;  $P$  – давление;  $\nu$  – кинематическая вязкость.

Лазерный пучок, распространяющийся вдоль оси  $z$  и падающий на поверхность  $xy$  вещества, создает объемный источник теплоты с плотностью мощности

$$Q = \alpha I(x, y, z, t). \quad (4)$$

Здесь  $\alpha$  – коэффициент поглощения света;  $I(x, y, z, t)$  – распределение интенсивности света в среде, которое в случае лазерного излучения определяется следующим образом:

$$I(x, y, z, t) = (1 - R) I_0(x, y) \exp(-\alpha z) f(t), \quad (5)$$

где  $I_0(x, y)$  – распределение интенсивности излучения в фокусном пятне;  $R$  – коэффициент отражения света;  $f(t)$  – форм-фактор, учитывающий изменение интенсивности излучения от времени  $t$  (см. рис. 1). В качестве начального условия принималась температура мишени 300 К. Это же значение принималось в глубине мишени (при  $x, y$  и  $z \rightarrow \infty$ ) в качестве граничных условий.

Распределение интенсивности лазерного излучения в пятне фокусировки  $I_0(x, y)$  и форм-фактор  $f(t)$

приведены в работе [5]. Экспериментально измеренный размер пятна фокусировки составлял  $0,5 \times 0,7$  мм. Коэффициент отражения излучения от поверхности мишени подбирался исходя из глубины лазерного кратера, появляющегося в мишени при воздействии на нее одного импульса сфокусированного излучения, и количества испаренного при этом материала. Форма импульса и пиковая мощность излучения в расчетах также соответствовали в реализующемся эксперименте аналогичным параметрам (см. рис. 1), энергия импульса в данном случае составляла 1 Дж.

Чтобы связать поток массы испаренного вещества  $J$  и давление над поверхностью мишени  $P_s$ , можно воспользоваться известной формулой Герца–Кнудсена

$$J = \eta P_s \sqrt{m / (2\pi k T)}, \quad (6)$$

где  $m$  – масса молекулы пара;  $\eta$  – коэффициент прилипания. Поскольку  $\eta$ , как правило, близок к единице [8], для простоты мы считали  $\eta = 1$ .

Кроме давления паров на жидкий расплав действуют силы поверхностного натяжения, которые учитывались нами согласно [11]. Таким образом, суммарное давление на поверхность жидкого расплава вычислялось следующим образом:

$$P_{sl} = J \sqrt{\frac{2\pi k T}{m}} - \sigma \left( \frac{\partial^2 z_s}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 z_s}{\partial y^2} \right), \quad (7)$$

где  $\sigma$  – коэффициент поверхностного натяжения;  $z_s$  – высота (глубина) поверхности раздела «жидкость – газ». Уравнение (7) являлось граничным условием в уравнении (3).

Зависимость давления пара и температуры кипения учитывалась с помощью уравнения Клапейрона–Клаузиуса [12]. Используемые в модели теплофизические константы взяты из [13–15].

Для сравнения были рассмотрены два вещества – иттрий-алюминиевый гранат (YAG) и оксид циркония, стабилизированный иттрием (YSZ), т.е. вещество, состоящее из 92%  $ZrO_2$  и 8%  $Y_2O_3$ . Эти вещества существенно различаются по коэффициенту теплопроводности, но имеют близкие остальные теплофизические характеристики.

Более высокий коэффициент теплопроводности у YAG способствует лучшему оттоку тепла в глубь образца, что отодвигает момент начала кипения материала мишени в YAG по сравнению с YSZ. Несмотря на то что температура кипения YAG из-за наличия  $Al_2O_3$  несколько ниже, чем YSZ, режим развитого испарения в YSZ достигается быстрее благодаря значительно меньшему оттоку тепла в глубь мишени.

Расчеты дали полную картину изменения температуры в образце, испарения материала и движения жидкого расплава. Разрезы кратеров плоскостью  $zox$  приведены на рис. 1 для YAG и рис. 2 для YSZ. (Масштаб по оси  $z$  увеличен по сравнению с осью  $x$ ).

Была рассчитана также динамика изменения интегральных геометрических характеристик кратеров. Зависимость глубин и объемов кратеров и зон расплава от времени для обоих веществ показана на рис. 3.

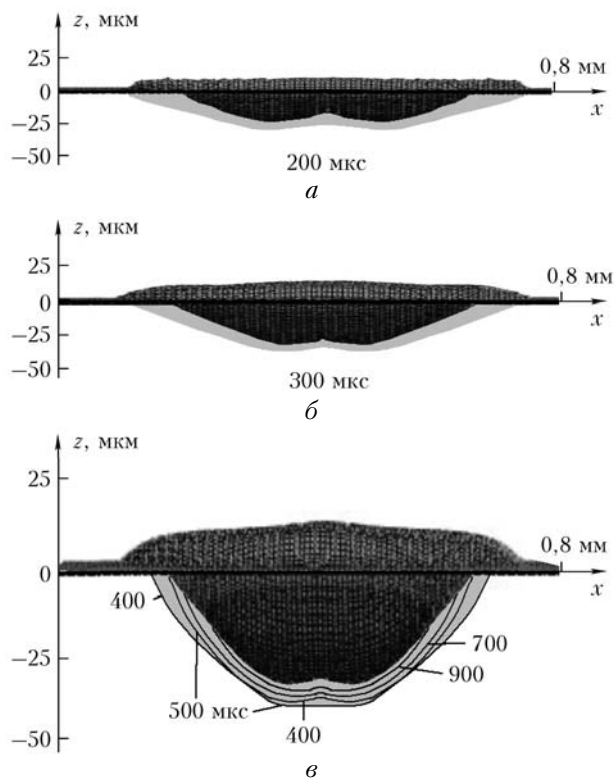


Рис. 2. Формирование кратера в YSZ-мишени. Проекция в плоскости  $zox$ . Область расплава внутри мишени показана серым цветом. Масштаб по оси  $z$  увеличен:  $a$  и  $b$  – в 2 раза,  $v$  – в 5 раз

Под действием избыточного давления паров мишени начинается частичное вытеснение жидкого расплава из зоны испарения. Следствием вытеснения расплава является формирование бруствера над поверхностью мишени. Заметным бруствер становится примерно к моменту времени 100 мкс. Последующие 100 мкс происходят быстрый рост бруствера и углубление кратера благодаря испарению (преимущественно) и вытеснению жидкого расплава (см. рис. 1,  $a$  и 2,  $a$ ). По инерции движение расплава, формирующего бруствер, продолжается на спаде интенсивности лазерного импульса. Этот процесс заканчивается для YAG примерно к 400 мкс (см. рис. 1,  $b$ ), а для YSZ, вследствие меньшего объема расплава, примерно к 300 мкс (см. рис. 2,  $b$ ). Далее, благодаря силам поверхностного натяжения рост бруствера останавливается и слегка сглаживается его форма. Это является началом стекания расплава в глубь кратера под действием сил поверхностного натяжения (действие гравитационных сил здесь пренебрежимо мало), однако кристаллизация расплава останавливает этот процесс в самой начальной стадии – к 500 мкс для YAG и 400 мкс для YSZ (см. рис. 1,  $v$  и 2,  $v$ ).

Результаты моделирования дают возможность сравнить динамику плавления и испарения мишеней YAG и YSZ.

Благодаря значительно более высокому коэффициенту теплопроводности зона расплава в YAG существенно больше, чем в YSZ. Кроме того, волна плавления в YAG опережает волну испарения в отличие

от YSZ, где они идут практически синхронно, за исключением конечной стадии импульса, когда мощности излучения не хватает для кипения, но еще достаточно для плавления мишени. Сказанное иллюстрирует рис. 3, где приведены зависимости объемов и глубин как кратеров, так и зон расплава для обоих материалов.

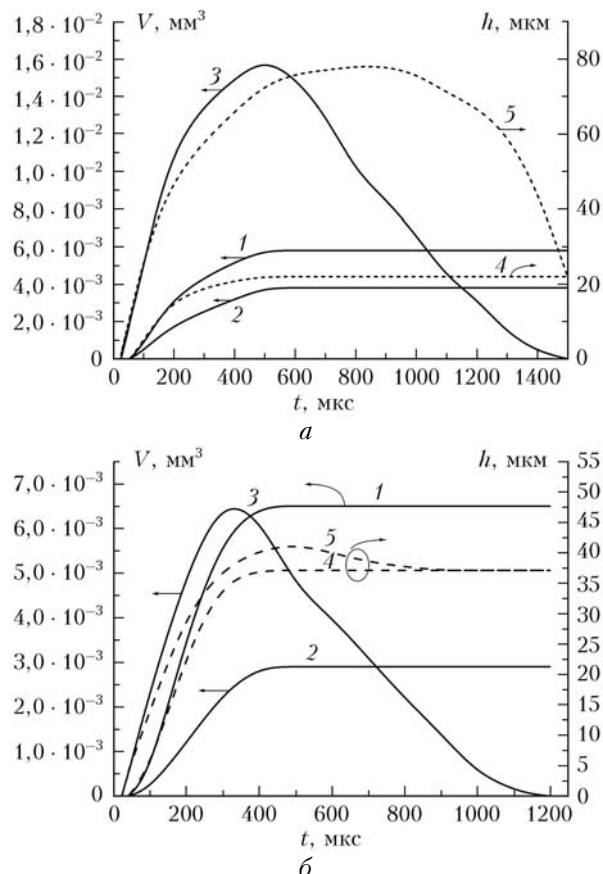


Рис. 3. Геометрические характеристики кратеров в YAG ( $a$ ) и YSZ ( $b$ ): 1–3 – объемы кратера, бруствера и зоны расплава; 4 и 5 – глубина кратера  $h_c$  и зоны расплава  $h_m$

Рис. 1 и 2 позволяют также детально проследить динамику формирования и кристаллизации расплава. Кристаллизация, начинающаяся в периферийных областях, как было сказано выше, является причиной фиксации бруствера, завершающей его формирование. В YAG это происходит примерно к 500 мкс, а в YSZ примерно к 400 мкс. Это хорошо иллюстрируется рис. 1,  $v$  и 2,  $v$ , где видно, что бруствер находится уже за границей зоны расплава в отличие от предыдущих моментов времени (см. рис. 1,  $a$ ,  $b$  и 2,  $a$ ,  $b$ ).

Кристаллизация жидкого расплава в YAG заканчивается позже, чем в YSZ, хотя это не является очевидным на первый взгляд. С одной стороны, объем расплава в YSZ меньше, но у него меньше и коэффициент теплопроводности, а следовательно, и скорость ухода тепла в глубь мишени.

В YAG остывающий расплав стремится по форме приблизиться к полусфере, чтобы сократить поверхность. И к моменту времени 1400 мкс расплав

представляет собой почти полусферическую область, расположенную в самом центре кратера между двумя максимумами глубины. Кристаллизация расплава в мишени из YAG завершается к моменту времени 1500 мкс (см. рис. 3, а, кривая 3).

В YSZ из-за того что форма зоны расплава почти повторяет форму кратера и имеет гораздо меньшую толщину, динамика остывания протекает по-другому. Уменьшение объема расплава начинается уже на завершающей стадии лазерного импульса (400–600 мкс), хотя глубина расплава продолжает расти (рис. 3, б, кривые 3 и 5). Эта ситуация схожа с тем, что имеет место и в YAG. Далее область расплава тоже начинает стремиться к сферичности, но из-за особенности формы это проявляется в сокращении зоны расплава по краям и в центральной области кратера (см. рис. 2, в), пока к 900 мкс расплав в центре не исчезнет совсем. При этом область расплава «распадается» на две части, разделяемые продольной плоскостью симметрии кратера. Окончательно расплав кристаллизуется к 1200 мкс (рис. 3, в, кривая 3).

Для оценки эффективности лазерного испарения важными характеристиками являются доля энергии, приходящейся на прогрев, расплав и испарение материала мишени. На рис. 4 представлена динамика перераспределения энергии лазерного излучения между твердой, жидкой и газообразной фазами в YAG и YSZ соответственно. Пунктирной кривой показана зависимость от времени энергии лазерного импульса, введенной в мишень. Видно, что качественно ход кривых для YAG и YSZ одинаков, различия лишь количественные и обусловлены разными коэффициентами теплопроводности.

На начальной стадии происходит нагрев мишени, и доля энергии, поглощенная в твердой фазе, составляет 100%. Далее начинаются плавление и испарение мишени и энергия в основном распределяется между жидкой и газообразной фазами. Максимум доли энергии в газообразной фазе (т.е. энергии, затраченной на испарение) достигает примерно к 300 мкс (кривая 1 на рис. 3). К этому моменту времени кривая мощности лазерного излучения (см. рис. 1) уже заметно спадает, скорость испарения уменьшается и фронт волны плавления начинает ускоряться по сравнению с фронтом волны испарения. Это особенно заметно в YSZ (см. рис. 3, б, кривые 4 и 5). В YAG скорость распространения волны плавления выше, чем волны испарения на протяжении всего импульса, и поэтому максимум на кривой доли энергии испарения (рис. 4, а, кривая 1) почти не заметен в отличие от YSZ (рис. 4, б, кривая 1).

После 500 мкс преобладающим становится процесс остывания мишени, который характеризуется кристаллизацией расплава и, как следствие, уменьшением доли энергии в жидкой фазе и увеличением в твердой. Доля энергии в газообразной фазе при этом остается постоянной, так как в модели принимается, что все испаренное вещество улетело в виде лазерного факела и пар сконденсировался уже вдали от мишени.

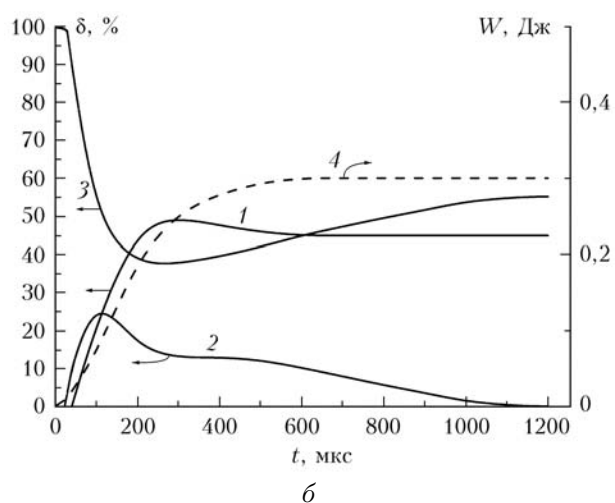
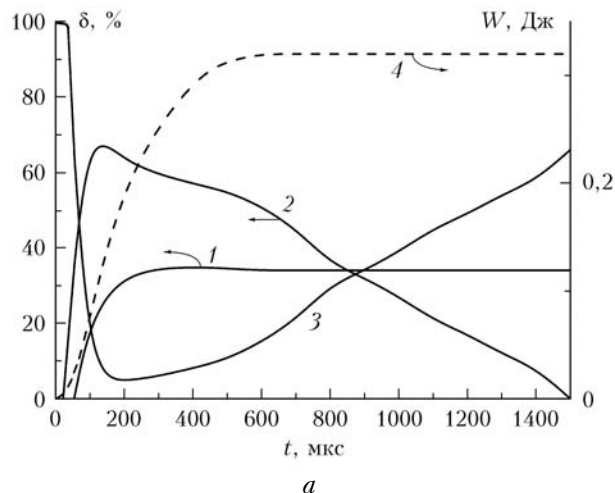


Рис. 4. Энергетические характеристики лазерного испарения в YAG (а) и YSZ (б): 1–3 – доли энергии лазерного импульса, сосредоточенные в газообразной, жидкой и твердой фазах; 4 – энергия лазерного импульса

Из рис. 4 видно, что доля энергии, приходящаяся на испарение в YAG, составляет 35%, а в  $ZrO_2$  – 45%. Разница между ними обусловлена более высокой теплопроводностью YAG, обеспечивающей лучший уход тепла в глубь мишени. Если данные значения умножить на коэффициент поглощения лазерного излучения  $(1 - R)$ , то получится эффективность испарения, т.е. отношение энергии, затраченной на испарение  $(W_{ev})$ , к общей энергии лазерного импульса  $(W_{las})$ . Для YAG эффективность испарения  $(W_{ev}/W_{las})$  составляет  $\approx 10\%$  а для  $ZrO_2 \approx 12\%$ , что неплохо согласуется с экспериментальными данными [2, 5].

Таким образом, проведенные расчеты позволили детально прояснить динамику испарения мишени и формирования кратера под действием  $CO_2$ -лазера «ЛАЭРТ», параметры импульса которого не позволяют применить ни одну из известных ранее моделей. Расчетная модель учитывала как процессы нагрева и испарения мишени, так и динамику расплава. Динамика формирования кратера рассмотрена для

мишеней из иттрий-алюминиевого граната и оксида циркония, стабилизированного иттрием, которые существенно различаются по коэффициенту теплопроводности. Динамика формирования кратера и брус-тера в YAG и YSZ качественно схожа, характерные времена их формирования 500 и 400 мкс соответственно. Существенные различия наблюдаются в поведении зоны расплава. Расчеты позволили обосновать наблюдаемую в эксперименте эффективность испарения мишеней из YAG и YSZ на уровне ~ 10%.

Работа выполнена при поддержке программ Президиума УрО РАН и РФФИ, проекты № 10-08-00078-а, 11-08-00005-а.

1. Осипов В.В., Иванов М.Г., Лисенков В.В. Высокоэффективный импульсно-периодический CO<sub>2</sub>-лазер «ЛАЭРТ» для технологических применений // Квант. электрон. 2002. Т. 32, № 3. С. 253–259.
2. Osipov V.V., Kotov Yu.A., Ivanov M.G., Samatov O.M., Lisenkov V.V., Platonov V.V., Murzakaev A.M., Medvedev A.I., Azarkevich E.I. Laser Synthesis of Nanopowders // Laser Phys. 2006. V. 16, N 1. P. 116–125.
3. Осипов В.В., Соломонов В.А., Платонов В.В., Иванов М.Г., Снигирева О.А., Лисенков В.В. Спектроскопия лазерного факела. I. Графитовая мишень // Квант. электрон. 2005. Т. 35, № 5. С. 467–473.
4. Осипов В.В., Соломонов В.А., Платонов В.В., Иванов М.Г., Снигирева О.А., Лисенков В.В. Спектроскопия лазерного факела. II. Мишени графит- и оксид-циркония, стабилизированные иттрием // Квант. электрон. 2005. Т. 35, № 7. С. 633–637.
5. Осипов В.В., Платонов В.В., Лисенков В.В. Динамика лазерного факела в процессе синтеза наночастиц // Квант. электрон. 2009. Т. 39, № 6. С. 541–546.
6. Осипов В.В., Лисенков В.В., Шитов В.А., Лукьяшин К.Е. Воздействие лазерного излучения на неподвижную и быстро смещающуюся относительно лазерного пучка мишень // Квант. электрон. 2009. Т. 39, № 4. С. 321–327.
7. Анисимов С.И., Лукьянчук Б.С. Избранные задачи теории лазерной абляции // Успехи физ. наук. 2002. Т. 172, № 3. С. 301–333.
8. Самохин А.А. Фазовые переходы первого рода при действии лазерного излучения на поглощающие конденсированные среды // Труды ИОФАН. 1988. № 13. С. 3.
9. Mullenix N. A Coupled Gas Dynamics And Heat Transfer Method for Simulating the Laser Ablation Process of Carbon Nanotube Production. Arcon: The University of Akron, 2005. 147 p.
10. Mazhukin V., Smurov I., Flamant G. Overheated metastable states in pulsed laser action on ceramics // J. Appl. Phys. 1995. V. 78, N 2. P. 1259–1270.
11. Ландау Л.Д., Lifshits E.M. Механика сплошных сред. М.: ГИТТЛ, 1954. 795 с.
12. Скрипов В.П., Фаизуллин М.З. Фазовые переходы кристалл – жидкость – пар и термодинамическое подобие. М.: Физматлит, 2003. 160 с.
13. Физические величины: Справочник / Под ред. И.С. Григорьева и Е.З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.
14. Казенас Е.К., Цветков Ю.В. Испарение оксидов. М.: Наука, 1997. 543 с.
15. Балкевич В.Л. Техническая керамика. М.: Стройиздат, 1984. 256 с.

*V.V. Lisenkov, V.V. Osipov. Numerical modeling of pulsed CO<sub>2</sub> laser radiation impact on heat-resistant oxides target.*

The dynamic of high power CO<sub>2</sub> laser radiation impact on yttrium-aluminum garnet (YAG) and yttrium stabilized zirconium oxide (YSZ) targets has been investigated. The laser pulse had the following parameters: an energy of 1 J, duration of 250 μs, a peak power of 7 kW. The investigations were carried out with the help of 3D numerical model, which included the equations of heat conductivity and movement of melt. With the help of our model we have calculated the dynamics of evaporation of target material together with the displacement of the melt under action of overpressure of vapor. These processes result in formation of a crater. The crystallization of melt and redistribution of energy between solid, liquid, and gaseous phases have been also calculated. We have explained the non-stoichiometric evaporation of complex targets. Calculations also explained an evaporation efficiency of 10%, experimentally observed for YAG and YSZ targets.