

TEPELNÉ VLASTNOSTI KOVOVÝCH TENKÝCH VRSTEV: POROVNÁNÍ NUMERICKÉHO 2D MODELU (COMSOL) A ANALYTICKÉHO 1D MODELU (MATLAB)

J. Tesař¹, N. Semmar²

¹ Katedra fyziky, Fakulta aplikovaných věd, Západočeská univerzita, Univerzitní 22, 306 14 Plzeň

² GREMI, Université d'Orleans, 14 rue d'Issoudun, BP 6744, 45067 Orleans Cedex 2, France

Abstrakt

V programu COMSOL Multiphysics byl vytvořen 2D model vedení tepla jako simulace tepelného ohřevu materiálu po dopadu pulsu laserového paprsku. Simulace byla provedena jak pro objemové materiály tak pro tenké vrstvy. Pro zjištění tepelného odporu mezi tenkou vrstvou a substrátem byl použit analytický 1D model vytvořený v programu MATLAB. Výsledky 2D modelů byly porovnány s 1D analytickým modelem [1 - 4] a s experimenty (nanosecond flash front method) provedenými KrF laserem o vlnové délce 248 nm s délkou pulsu 27 ns FWHM (Full Width at Half Maximum). Výsledky modelů a experimentů byly porovnány pro tenké vrstvy železa na křemíkovém substrátu a wolframu na železném substrátu.

1 Úvod

Význam laserového zpracování a zjišťování tepelných vlastností objemových materiálů a tenkých vrstev stále vzrůstá. Lasery jsou používány pro řezání, vrtání, svařování, značení materiálů atd., pulsní lasery jsou často používány pro zahřátí, roztavení nebo ablaci povrchu. Krátké laserové pulsy vnášejí do tenké povrchové vrstvy přesně dané množství energie a vnitřní část zůstává bez tepelné změny. Tenké vrstvy se specifickými vlastnostmi (tvrdost, tepelná odolnost, koeficient tření atd.) jsou často vystavovány vysokým teplotám, proto je nutné znát jejich vlastnosti za vyšších než pokojových teplot. Jednou z možností je ohřát povrch laserovým pulsem a pozorovat teplotní odezvu, tepelné vlastnosti materiálu lze potom určit z průběhu povrchové teploty.

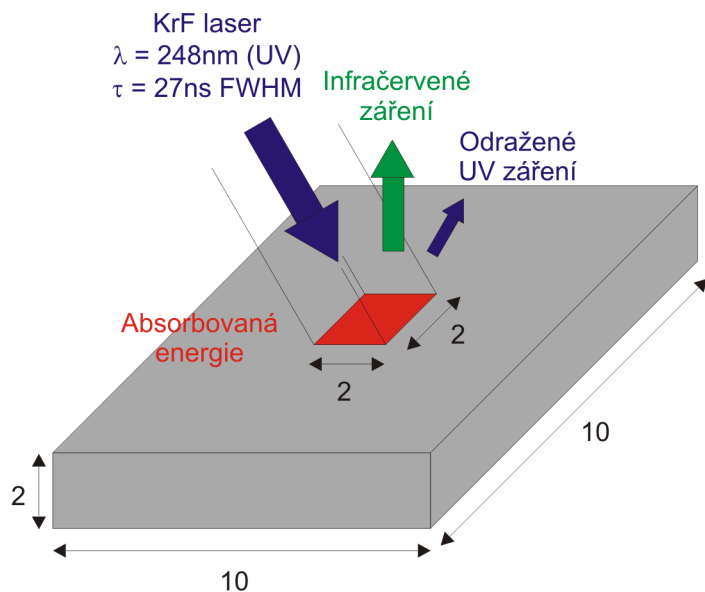
Pro laserové vyšetřování tepelných vlastností bylo vyvinuto mnoho experimentálních systémů. Při měření teplotní změny povrchu je často využíváno bezkontaktního měření, protože vyšší teplotu má jen část vzorku a její pokles je velmi rychlý. Pomocí rychlých infračervených detektorů a zrcadel s vysokou odrazivostí lze měřit intenzitu infračerveného záření v řádech nanosekund (nanosecond flash method) ze zadní strany vzorku [5, 6], běžnější je snímání teploty z přední strany [1, 2 a 3].

Vytvořením zjednodušeného modelu interakce laseru s materiálem lze simulovat jeho chování a porovnat výsledky modelů a experimentu. V oblasti ohřevu materiálu laserem bylo provedeno mnoho počítačových simulací pro průmyslové aplikace – model laserového svařování [7], vytvrzování povrchu laserem [8] a laserové ohýbání trubek [9]. Jiné modely byly vyvinuty na základě laboratorních experimentů využívajících různé druhy laserů [10, 11] a vysoce energetických laserů pro ablaci materiálů [12, 13].

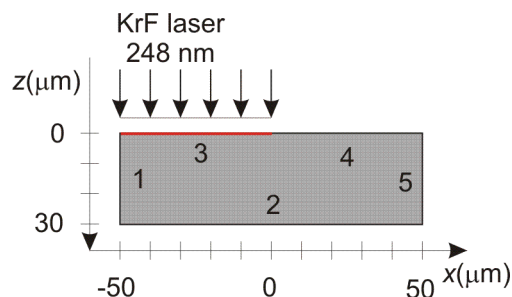
Jeden z demo příkladů programu COMSOL Multiphysics řeší interakci laseru s křemíkovým vzorkem, ale šířka laserového paprsku je zanedbána. V tomto příkladu je křemík považován za polopropustný a je počítáno s absorpcí energie v hloubce podle Lambert-Beerova zákona. Model interakce laseru s pohybujícím se materiálem vytvořil Bianco a spol. [14]. Simulovali pohybující se laser s Gaussovským rozdělením energie, nekonečným nebo jedním směrem nekonečným 3D obrobkem jednoduchého kvádrovitého tvaru s tepelnými ztrátami radiací a konvekcí. Všechny jejich simulace byly provedeny pro časy v řádu sekund a pro relativně velké vzorky.

V tomto článku je řešen laserový ohřev vzorku o rozměrech 10x10x2 mm s laserem ozářenou oblastí 2x2 mm (obr. 1) pro čas v řádu nanosekund, protože použitý KrF laser má délku trvání pulsu 27 ns FWHM. Teplotní pole ve 2D COMSOL modelu je počítáno jen pro část vzorku – pro hranici

mezi ohřivanou a neohřivanou oblastí a v z-ové souřadnici pro hloubky, kde je výrazná změna teploty – desítky mikrometrů (obr. 2).



Obrázek 1: Schematický pohled na interakci laserového paprsku s povrchem materiálu (rozměry v mm)



Obrázek 2: Nákres vybrané části vzorku pro model v COMSOLu s označením okrajových podmínek

2 Matematický popis

Matematická formulace problému je popsána objemovou rovnicí vedení tepla

$$\rho \cdot C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k \nabla T), \quad (1)$$

kde ρ je hustota materiálu, C_p měrná tepelná kapacita, T teplota, t čas a k tepelná vodivost materiálu. Vzorek může být zjednodušen na 2D obdélník – x souřadnice pro šířku a z souřadnice pro hloubku (obr. 2). Pro simulaci tepelného působení laseru byla vybrána pouze část vzorku, a to o takových rozměrech, které nemají vliv na šíření tepla po specifikovaný čas (500 ns). Řešení je pouze přestup tepla na rozhraní ohřivané části (ozářené laserem) a neohřivané části (neozářené laserem). Jako zdroj tepla byla použita energie absorbovaná na povrchu. Absorpce energie pod povrchem může být zanedbána, protože pro kovy je hloubka průniku záření velmi malá v porovnání s výškou vyšetřované části vzorku (tab. 1). Hloubka průniku záření δ_a KrF laseru o vlnové délce $\lambda = 248$ nm závisí na optických vlastnostech materiálu – indexu lomu n_1 a extinkčního koeficientu n_2

$$n = n_1 + in_2. \quad (2)$$

Absorpční koeficient a může být vyjádřen rovnicí

$$a = \frac{2\omega n_2}{c} = \frac{4\pi n_2}{\lambda} = \frac{2}{\delta_a}, \quad (3)$$

kde ω je kruhová frekvence, c rychlost světla, a může být dosazen do Lambert-Beerova zákona

$$I(z) = I_0 \cdot e^{-az}, \quad (4)$$

kde $I(z)$ je intenzita závislá na hloubce, I_0 intenzita na povrchu a z hloubka. V hloubce $z = 3 \cdot \delta_a$ je poměr intenzit menší než 3%.

Tabulka 1: OPTICKÉ VLASTNOSTI VYBRANÝCH KOVŮ [15]

<i>Materiál</i>	n_1	n_2	$a(\text{m}^{-1})$	$\delta a(\text{nm})$
Al	0,19	2,94	$0,1490 \cdot 10^9$	13,4253
Cu	1,12	1,88	$0,0953 \cdot 10^9$	20,9949
W	3,4	0,14	$0,1444 \cdot 10^9$	13,8493

Okrajová podmínka na povrchu vzorku (označena č. 3 na obr. 2) je popsána rovnicí

$$\vec{n} \cdot (k \nabla T) = q_0 + h(T_{inf} - T) + \sigma \cdot \varepsilon (T_{amb}^4 - T^4), \quad (5)$$

kde \vec{n} je normálový vektor, q_0 tepelný tok povrchem, h koeficient přestupu tepla konvekcí, T_{inf} a T_{amb} vnější teploty, σ Stefan-Boltzmannova konstanta a ε emisivita. Pro modelování laseru jako tepelného zdroje byly použity dva tvary průběhu výkonu laseru – obdélníkový a trojúhelníkový. Neohřívaná oblast (ozn. č. 4) má rovnici stejného tvaru jako je rovnice (5) bez zdrojového členu q_0 . Levá, pravá a spodní strana (č. 1, 2 a 5) jsou považovány za tepelně izolované – adiabatické podmínky, tj.

$$\vec{n} \cdot (k \nabla T) = 0. \quad (6)$$

V případě modelování tenké vrstvy je uvažována vnitřní okrajová podmínka mezi tenkou vrstvou a substrátem

$$\vec{n} \cdot (k_1 \nabla T_1 - k_2 \nabla T_2) = 0. \quad (7)$$

Rovnice (7) má význam kontinuity tepelného toku, v 1D modelu vytvořeném v MATLABu je použito rozhraní s tepelným odporem

$$\vec{n} \cdot (k_1 \nabla T_1 - k_2 \nabla T_2) = h \cdot (T_1 - T_2), \quad (8)$$

kde h představuje převrácenou hodnotu tepelného odporu R .

3 Realizace v COMSOLu

Pro tepelný model byl vybrán „Heat transfer mode“ a „Transient analysis“ v přenosu tepla typu „Conduction“. Geometrie vzorku je tvořena obdélníkem s rozměry podle obr. 2 a čarou pro vytvoření ozářeného povrchu s použitím Boolovského operátoru *difference*. Pro tenké vrstvy jsou vytvořeny dva obdélníky a umístěny k sobě.

V *Global expressions* jsou zadány proměnné a konstanty nezbytné pro modelování laserového pulsu – absorbovaná energie, ovlivněná oblast, tvar pulsu (časový průběh absorbovaného tepelného toku) a emisivita materiálu. Obdélníkový tvar je tvořen jednou hodnotou tepelného toku po dobu pulsu $\tau = 27$ ns, trojúhelníkový tvar lineárním nárůstem na maximální tok v čase $t_{max} = 5$ ns a poté lineárním poklesem na nulovou hodnotu v čase $t_{end} = 50$ ns [16] se stejnou energií jako v prvním případě. Počáteční teplota všech oblastí je nastavena na 293 K.

Jako zdroj tepla je použita energie absorbovaná na povrchu. Povrchová okrajová podmínka zahrnuje tepelné záření ($\varepsilon_{Fe} = 0,1$) a tepelný přestup do okolí ($h = 10 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$). Pro tenké vrstvy bylo rozhraní mezi tenkou vrstvou a substrátem počítáno s kontinuitou tepelného toku jako vnitřní okrajovou podmínkou. Ostatní okrajové podmínky byly považovány za tepelně izolované (adiabatické podmínky). Elementy sítě mají maximální velikost 500 nm, na povrchu (okraje 3 a 4) je použito jemnější rozdělení elementů s maximální velikostí 20 nm. Pro vnitřní okrajovou podmínku tenkých vrstev je také zadána maximální velikost elementu 20 nm.

V *solver paramaters* je nastaveno časové rozpětí 1 až 500 ns s krokem 1 ns. Pro řešení je použit standardní řešič.

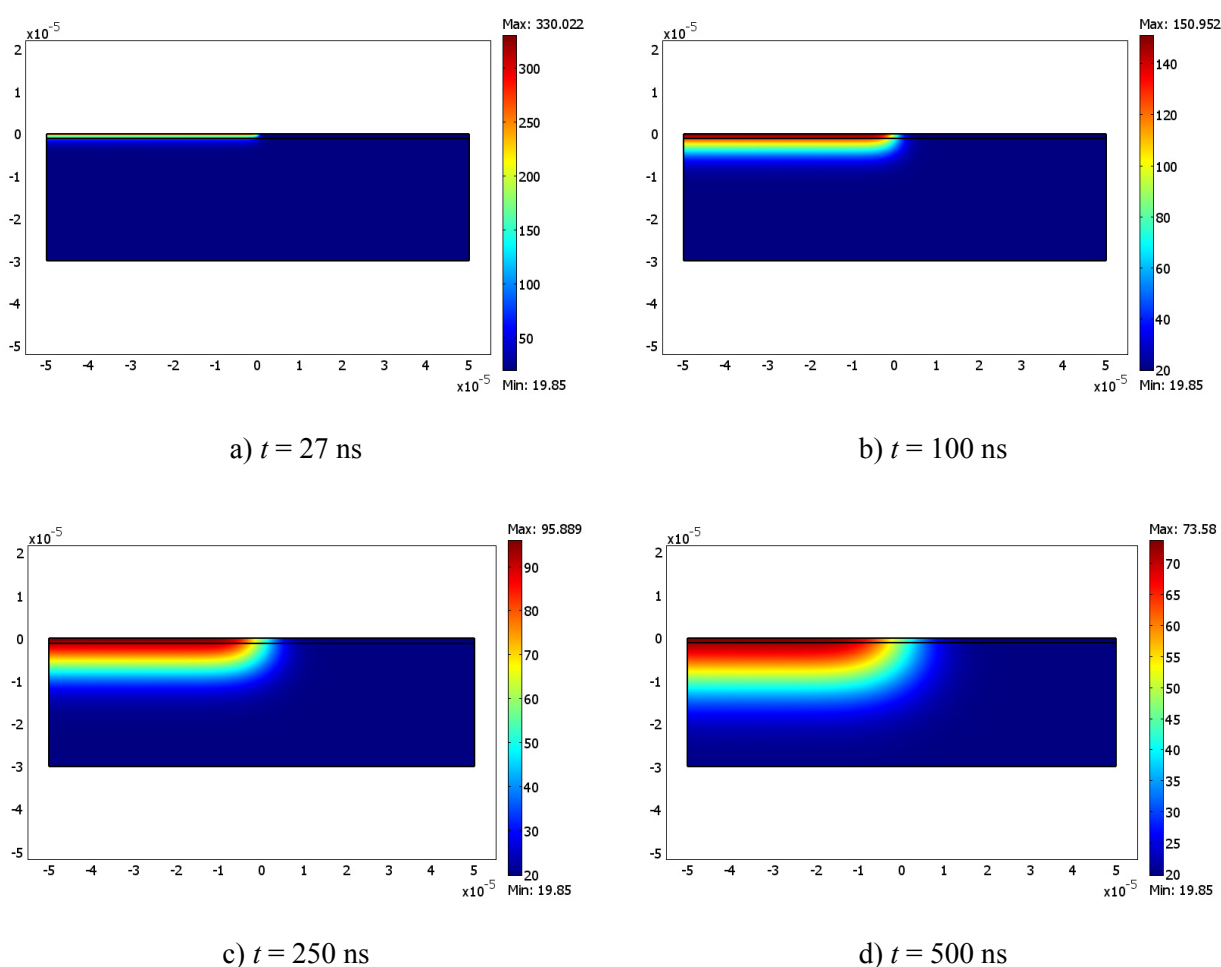
V modu *Postprocessing* je vybráno *Cross-Section Plot parameters/Point* a zadány souřadnice bodu $[-40e^{-6}, 0]$ pro zobrazení povrchové teploty (40 μm od hranice). Rozdíl této teploty oproti počáteční teplotě je použit pro výpočet zdánlivé efuzivity (apparent effusivity) e_{app} podle [4]

$$e_{app}(t) = \frac{Q}{T_d(t) \cdot \sqrt{\pi t}}, \quad (9)$$

kde $T_d(t)$ je diferenciální teplota, Q hustota absorbované energie a t čas.

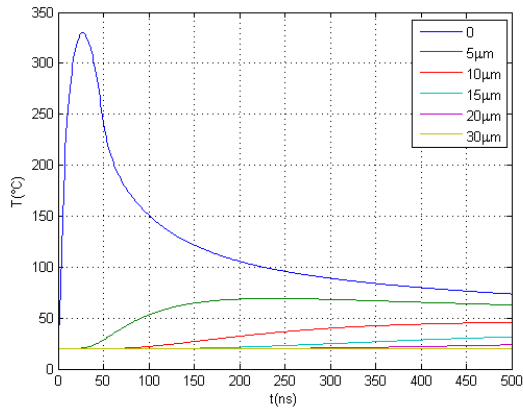
4 Výsledky modelu

Obrázek 3 představuje vývoj teplotního pole v 1140 nm tenké vrstvě Fe na Si substrátu při absorbované hustotě energie $Q = 107,5 \text{ mJcm}^{-2}$.

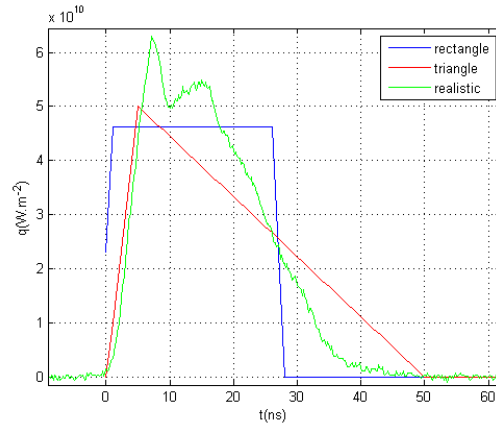


Obrázek 3: Vývoj teplotního pole 1140 nm silné vrstvy Fe na Si substrátu ($Q = 107,5 \text{ mJcm}^{-2}$) pro časy a) 27 ns, b) 100 ns, c) 250 ns, d) 500 ns

Se vzrůstající hloubkou vyšetřovaného bodu ve vzorku klesá maximální dosažená teplota, jak je možné vidět na obrázku 4. Na obrázku 5 je znázorněn časový průběh hustoty výkonu pro modelovaný trojúhelníkový a obdélníkový puls při absorbované hustotě energie $Q = 125 \text{ mJcm}^{-2}$, pro porovnání je přidán reálný průběh hustoty absorbovaného výkonu laserového paprsku reprodukováný z intenzity odraženého paprsku.



Obrázek 4: Časový průběh teploty 1140 nm silné vrstvy Fe/Si v hloubkách 0, 5, 10, 15, 20 a 30 μm

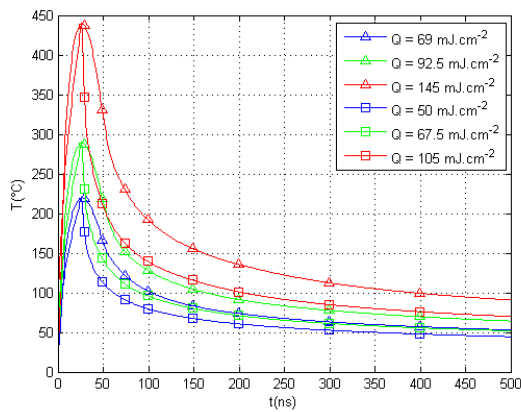


Obrázek 5: Hustota výkonu pro modelovaný obdélníkový a trojúhelníkový puls a pro skutečný puls, $Q = 125 \text{ mJcm}^{-2}$

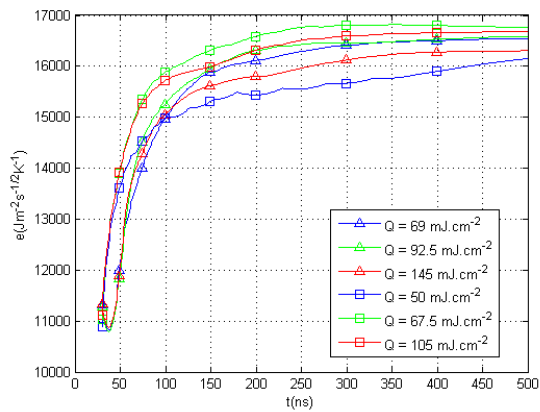
Na obrázku 6 a 7 je vidět rozdíl mezi použitím trojúhelníkového a obdélníkového tvaru laserového pulsu v časovém průběhu teploty resp. efuzivity. Použité hustoty absorbované energie a maximální teploty souhlasí s výsledky experimentů provedenými v laboratoři GREMI [2]. Teoretická hodnota efuzivity železa vypočtená podle definice je

$$e_{Fe} = \sqrt{\rho \cdot C_p \cdot k} = \sqrt{7870 \cdot 450 \cdot 80} = 16830 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}, \quad (10)$$

což je v souladu s výsledky 2D modelu v COMSOLu (obr. 7).



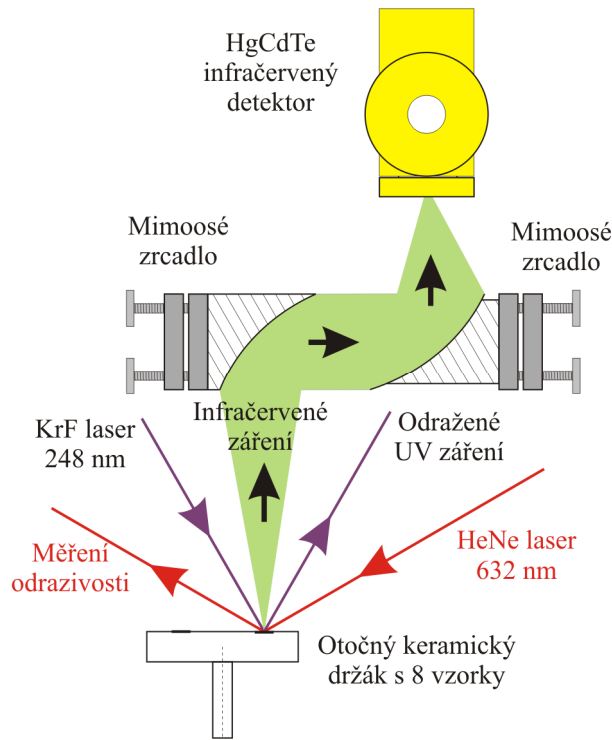
Obrázek 6: Závislost povrchové teploty na čase - porovnání pro objemový vzorek železa



Obrázek 7: Závislost efuzivity na čase pro obdélníkový a trojúhelníkový puls

5 Experimentální systém a výsledky

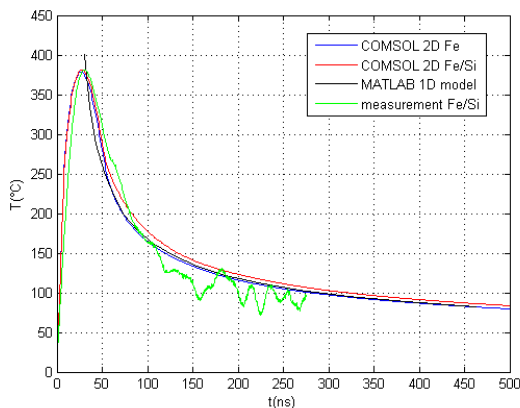
Hlavními prvky, které obsahuje experimentální systém, jsou excimer KrF laser ($\lambda = 248 \text{ nm}$ s délkou trvání pulsu 27 ns FWHM a maximální opakovatelnou frekvencí 50 Hz), homogonizér laserového svazku, otočný keramický držák na 8 vzorků, 2 mimoosá parabolická zrcadla, infračervený detektor chlazený kapalným dusíkem a další optické prvky – detailně popsáno v [2]. Detailní pohled na cestu infračerveného záření ze zahřátého povrchu vzorku na citlivou plochu infračerveného detektoru je ukázán na obrázku 8.



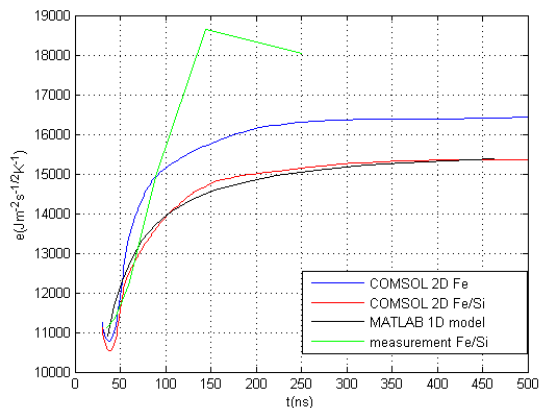
Obrázek 8: Princip měření tepelného záření rychlým IR detektorem

Z povrchové teploty, která je získána z měření za pomoci kalibrační křivky, je vypočítána efuzivita. Kalibrační křivka ukazuje závislost výstupního napětí infračerveného detektoru na teplotě vzorku. Kalibrační křivka $U = U(T)$ je vytvořena před nebo po každém měření za použití ohmického ohřevu a měření teploty na zadní straně termočlánkem. Pro výpočet teploty je použita inverzní křivka $T = T(U)$ a po ozáření vzorku laserem je časová závislost napětí $U(t)$ přepočítána na teplotní časovou závislost $T(t)$. Ze znalosti změny časového průběhu povrchové teploty oproti počáteční teplotě $T_d(t)$, hustoty absorbované energie Q a času t je vypočítána efuzivita e podle vztahu (9).

Porovnání mezi teplotním průběhem povrchové teploty jako výsledku 2D modelu v COMSOLu, 1D modelu tenké vrstvy v MATLABu a měření 540 nm tenké vrstvy Fe/Si, která byla připravena plasmovou magnetronovou depozicí, je ukázáno na obrázku 9. Objemové železo a 540 nm Fe/Si bylo simulováno v COMSOLu při hustotě absorbované energie $Q = 123 \text{ mJcm}^{-2}$. 1D analytický model byl vytvořen v MATLABu podle [2] s tepelnou vodivostí $k_{Fe} = 80 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$, tepelným odporem rozhraní $R = 3.10^{-9} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ a hustotou absorbované energie $Q = 115 \text{ mJcm}^{-2}$.

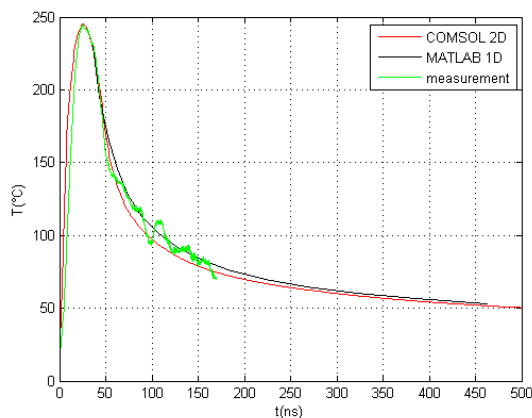


Obrázek 9: Měřená a simulovaná teplotní odezva tenké vrstvy Fe/Si o tloušťce 540 nm

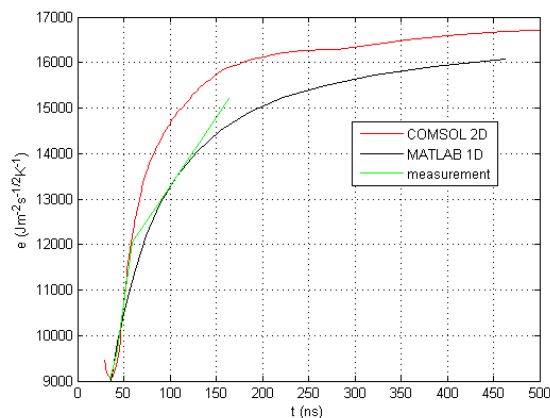


Obrázek 10: Měřený a simulovaný vývoj efuzivity tenké vrstvy Fe/Si o tloušťce 540 nm

Pro výpočet efuzivity z měření bylo použito logaritmického průměru teploty. Teoretická hodnota efuzivity pro křemíkový substrát je $e_{Si} = 15700 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$ ($k = 148 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$, $\rho = 2330 \text{ kgm}^{-3}$, $C_p = 712 \text{ Jkg}^{-1}\text{K}^{-1}$) a efuzivita železa $e_{Fe} = 16830 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$. Obrázek 10 ukazuje dobrou shodu mezi efuzivitou získanou z 1D modelu a 2D modelem. Lepší shoda efuzivity z měření a výsledků modelů byla pro časy delší než 300 ns.



Obrázek 11: Měřená a simulovaná teplotní odezva tenké vrstvy wolframu o tloušťce 770 nm na železném substrátu



Obrázek 12: Měřená a simulovaná efuzivita tenké vrstvy W/Fe o tloušťce 770 nm

Teplotní odezvu a časový vývoj efuzivity tenké vrstvy wolframu o tloušťce 770 nm na železném substrátu ukazují obrázky 11 a 12. Při simulaci v COMSOLu byla zadána tepelná vodivost wolframu $k_w = 70 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (shoda s [3]), což je hodnota menší než pro objemový wolfram ($k_{wo} = 174 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$). 1D modelem byl určen tepelný odpor rozhraní $R = 4 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$. Pro oba modely byla zadána hustota absorbované energie $Q = 63,7 \text{ mJcm}^{-2}$. Teoretická hodnota efuzivity objemového wolframu je $e_{wo} = 21050 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$ ($k_{wo} = 174 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$, $\rho = 19300 \text{ kgm}^{-3}$, $C_p = 132 \text{ Jkg}^{-1}\text{K}^{-1}$) a pro vyšetřovanou tenkou vrstvu $e_w = 12360 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$ ($k_w = 70 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$).

6 Závěr

Prezentovaný numerický model umožňuje určení 2D přechodného teplotního pole vyvolaného nanosekundovým laserovým pulsem na objemový materiál nebo tenkou vrstvu. Z profilů povrchové teploty byla vypočítána tepelná efuzivita a teplotní pole ukázala šíření tepla do materiálu po dopadu laserového paprsku.

Bylo ukázáno, že pro modelování laserového pulsu je trojúhelníkový tvar vhodnější než obdélníkový, protože teplotní profil je bližší experimentální teplotě. Výsledky použitého 2D modelu v COMSOLu jsou v souladu s analytickým 1D modelem v MATLABu a měřeními.

V případě 540 nm tenké vrstvy železa na křemíkovém substrátu jsou si teplotní průběhy velmi blízké s maximálními teplotami okolo 380°C v čase $t = 27 \text{ ns}$ a přibližně exponenciálním poklesem na 85°C v $t = 500 \text{ ns}$. Vypočtené efuzivity jsou blízké teoretickým hodnotám efuzivit objemových materiálů $e_{Fe} = 16830 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$ a $e_{Si} = 15700 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$ pro časy blízké se 500 ns. Experimentální efuzivita by byla bližší teoretické hodnotě pro delší časy.

V případě 770 nm tenké vrstvy wolframu na železném substrátu dosahují teplotní průběhy maximálních hodnot okolo 245°C v čase $t = 25 \text{ ns}$ a poklesem na 50°C v $t = 500 \text{ ns}$. Efuzivity vypočtené z modelů se blíží hodnotě efuzivity substrátu $e_{Fe} = 16830 \text{ Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$. Podobný trend lze očekávat i pro efuzivitu vypočtenou z experimentu pro delší časy.

7 Literatura

- [1] J. Martan, N. Semmar, C. Leborgne, E. Le Menn, J. Mathias. *Thermal properties characterization of conductive thin films and surfaces by pulsed lasers*. Applied Surface Science, 247, p. 57–63, 2005.
- [2] J. Martan. *Thermo-kinetic Model of Laser-material interaction in the Form of Criteria Equations*. PhD. Thesis, Plzen, Czech Republic + Orleans, France, 2005.
- [3] J. Martan, N. Semmar, C. Boulmer-Leborgne, P. Platin, E. Le Menn. *Thermal Characterisation of Tungsten Thin Films by Pulsed Photothermal Radiometry*. Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering, 10, p. 333-344, 2006.
- [4] D. L. Balageas, J. C. Krapez, P. Cielo. *Pulsed photothermal modeling of layered materials*. J. Appl. Phys., 59 (2), p. 348-357, 1986.
- [5] S. Min, J. Blumm, A. Lindemann. *A new laser flash system for measurement of the thermophysical properties*. Thermochimica Acta, 455, p. 46-49, 2007.
- [6] W. P. Leung, A. C. Tam. *Techniques of flash radiometry*. J. Appl. Phys., 56 (1), p. 153-161, 1984
- [7] R. Rai, G. G. Roy, T. DebRoy. *A computationally efficient model of convective heat transfer and solidification characteristics during keyhole mode laser welding*. Journal of Applied Physics, 101, 2007.
- [8] A. Basu, J. Chakraborty, S. M. Shariff, G. Padmanabham, S. V. Joshi, G. Sundararajan, J. Dutta Majumdera, I. Manna. *Laser surface hardening of austempered (bainitic) ball bearing steel*. Scripta Materialia, 56, p. 887-890, 2007.
- [9] S. Safdar, L. Li, M. A. Sheikh, Z. Liu. *Finite element simulation of laser tube bending: Effect of scanning schemes on bending angle, distortions and stress distribution*. Optics & Laser Technology, 39, p. 1101-1110, 2007.
- [10] M. W. Turner, P. L. Crouse, L. Li. *Comparative interaction mechanisms for different laser systems with selected materials on titanium alloys*. Applied Surface Science, 2007, Article in press.
- [11] J. Wang, Z. Shen, B. Xu, X. Ni, J. Guan, J. Lu. *Numerical simulation of laser-generated ultrasound in non-metallic material by the finite element method*. Optics & Laser Technology, 39, p. 806-813, 2007.
- [12] V. Oliveira, R. Vilar. *Finite element simulation of pulsed laser ablation of titanium carbide*. Applied Surface Science, 2007, Article in press.
- [13] V. Oliveira, R. Colac, R. Vilar. *Simulation of KrF laser ablation of Al₂O₃-TiC*. Applied Surface Science, 2007, Article in press.
- [14] N. Bianco, O. Manca, S. Nardini, S. Tamburrino. *Transient heat conduction in solids irradiated by a moving heat source*. Proceedings of COMSOL Users Conference, Milano, 2006.
- [15] E. F. Schubert. *Refractive index and extinction coefficient of materials*. 2004.
- [16] N. Semmar, C. Georges, C. Boulmer-Leborgne. *Thermal behaviour of electric connector coating irradiated by a laser beam*. Microelectronics Journal, 33, 705-710, 2002.

Jiří Tesař
Katedra fyziky
Fakulta aplikovaných věd
Západočeská univerzita
Univerzitní 22, 306 14 Plzeň
tesar@kfy.zcu.cz

Nadjib Semmar
GREMI
Universite d'Orleans
14 rue d'Issoudun, BP 6744
45067 Orleans Cedex 2, France
nadjib.semmar@univ-orleans.fr