

文章编号: 1001-4322(2000)06-0685-04

激光表面纹理化过程中的 Rayleigh-Taylor 不稳定性*

黄峰, 楼祺洪, 于天燕, 雷博, 董景星, 魏运荣, 范滇元

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 800-216 信箱, 上海 201800)

摘要: 用表面纹理化的热模型, 分析了固体表面的熔化和重固化的物理过程, 计算了在纹理化过程中的表面温度、穿透深度、熔化深度、相面移动速度等物理量, 提出了 Rayleigh-Taylor 不稳定性形成周期化结构的机理。

关键词: 热模型; 纹理化; 不稳定性

中图分类号: TN 241 **文献标识码:** A

激光辐照固体表面引起的表面熔化, 会在固体表面引起一些周期性的结构, 称之为表面纹理化, 表面纹理化在材料表面处理中有重要作用, 如聚四氟乙烯表面纹理化后, 可以增加材料的亲和性^[1]。常见的图案有钯(Pd)材料的同心圆结构, 金属材料的点凸起和山脉结构^[2], 半导体 Si(100)材料的周期圆锥结构^[3], Ge 材料的直条纹结构^[4], 还有磁盘材料的墨西哥宽边帽, 周期性新月型结构。我们在研究激光增强合成纤维拒油性时, 还发现周期性垂直于纤维轴线的柱状组织结构。

光在固体表面由于缺陷或尘埃粒子产生散射光, 而散射光和入射光是相干的, 受到干涉调制的光辐射到材料上, 在材料表面形成干涉图案, 这种干涉图案基本可以用简单的几何光学解释, 点散射和线缺陷散射的图案已经被观测到(Pd 材料和 Ge 材料), 但是这种干涉图案的周期和入射光波长是同数量级的, 而激光照射金属或高分子材料表面, 会形成周期为 4~15 μm 的组织, 和波长并不是同数量级, 上述理论并不能很好的解释这种激光表面纹理化的过程。

另一种理论解释为在聚焦激光的照射下, 材料熔化, 在材料表面形成温度梯度, 液体将从低表面张力向高表面张力流动, 形成中间突起, 这种解释并没有解释均匀激光纹理化。在流体力学中, Rayleigh-Taylor 不稳定性可以产生周期性结构^[5], 这种理论也可以用来解释金属和合成纤维激光纹理化产生周期性结构。在均匀的激光照射下, 在材料表面并没有产生温度梯度, 这时, 熔化的液体单元向同一方向移动, 根据惯性原理, 表面张力尽量保持液面平展, 惯性和表面张力之间的竞争导致表面的不稳定性(Rayleigh-Taylor 不稳定性), 一个小的扰动就可导致周期性结构。

1 材料表面的熔化和重固化

激光照射材料表面, 表面温度的计算在很多文献中已有介绍, 但都没有考虑在温度升高过程中发生的相变过程, 只是简单的计算温度的升高。我们选择焓 H 作为热函数, 考虑激光照射材料的过程中的相变过程, 激光和材料作用的热方程为^[2]

$$\frac{\partial H(x, t)}{\partial t} - \nabla [K(T) \nabla T(x, t)] + v_s \nabla \Delta H(x, t) = - \hat{k}_1 \nabla I(x, t) \quad (1)$$

式中, v_s 是激光扫描的速度, 在我们的实验中, $v_s = 0$; $K(T)$ 是热散射系数, \hat{k}_1 为激光在传播方向的波矢量, $I(x, t)$ 为激光光强。激光光斑远远大于激光穿透深度, 因而只考虑均匀照射激光时垂直于材料方向,

* 收稿日期: 2000-05-17; 修订日期: 2000-09-27

基金项目: 上海市科学技术发展基金和华中科技大学激光技术国家重点实验室资助课题

作者简介: 黄峰(1973-), 男, 博士生, 研究方向包括激光器件, 激光应用。

热方程简化为

$$\frac{\partial H(T)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (\kappa \frac{\partial T}{\partial x}) + f(x, t) \quad (2)$$

$f(x, t)$ 是激光吸收函数, 考虑到相变时, H 函数为

$$H(T) = \int_{T_0}^T \rho(T') c_p(T') dT' + \begin{cases} 0, & T < T_m \\ H_l, & T_m < T < T_b \\ H_v, & T > T_b \end{cases} \quad (3)$$

式中 l 代表液相, m 代表熔化, b 代表汽化, H_l 为熔化潜热; H_v 为汽化潜热; T_m 为熔化温度; T_b 为汽化温度。当液体和固体共存时, 温度为 T_m , $H = H_s(T_m) + g_1 H_l$, g_1 为液态所占的比例, $H(T)$ 为固态时的热焓量。激光吸收函数 $f(x, t)$ 可以分解为时间和空间两个分离的部分, 具体表达式为

$$f(x, t) = I(x)I(t) = (1 - R) \gamma e^{-\gamma x} I(t) \quad (4)$$

R 为反射系数; γ 为吸收系数; $I(t)$ 描述激光的时间脉冲特性。考虑时间平滑的脉冲

$$I(t) = I_0(t/t_0)^\beta \exp[\beta(1 - t/t_0)] \quad (5)$$

其中, I_0 为光强极大值; t_0 为脉冲宽度; β 为描述脉冲形状的因子。

忽略材料表面在短时间内的辐射损失, 材料的初始温度为 T_0 , 激光在材料中的穿透深度非常小, 所以在材料无穷远处, 材料的温度和初始温度 T_0 相等, 初始条件可表示为

$$\frac{\partial T(x, t)}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0, \quad T(x \rightarrow \infty, t) = T_0, \quad T(x, t=0) = T_0 \quad (6)$$

采用 308nm 的准分子激光作为处理激光, 激光能量密度为 260 mJ/cm^2 , 脉冲宽度为 50ns, 数值模拟得到材料熔化深度和时间的关系如图 1 所示。

激光脉冲照射时, PET 材料表面的温度为 402°C , 超过材料的熔化温度 327°C 。激光脉冲照射 19ns 后, 材料表面开始熔化, 激光继续照射, 材料内部开始熔化, 熔化深度加深, 当激光峰值过后, 熔化深度达到最大, 为 $0.25 \mu\text{m}$, 激光过后, 材料就开始凝固。在激光处理材料过程中材料的熔化深度非常小, 熔化的时间非常短, 即材料快速熔化, 快速凝固。

在表面纹理化过程中, 熔化液体的流动起关键作用, 由于液体的运动, 导致惯性力和表面张力竞争, 外界有一个小的微扰就可以导致不稳定性, 而不稳定性可以导致周期性结构, 如 Rayleigh-Taylor 不稳定性可以导致周期性结构。在熔化的过程中, 液体和固体的交界面的移动速度随时间是变化的, 在激光照射过程中, 熔化表面的移动速度和时间的关系如图 2 所示。在熔化的过程中, 熔化界面的速度是不断加快的, 加速度约为 $8 \times 10^7 \text{ m/s}^2$, 激光脉冲过后, 熔化界面的速度降低, 加速度为 $-9 \times 10^7 \text{ m/s}^2$ 。

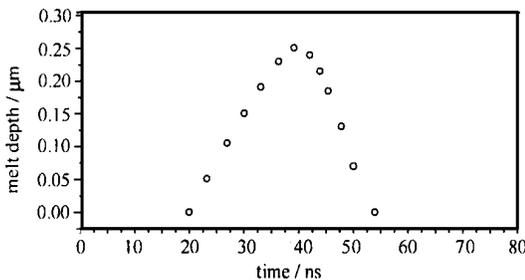


Fig. 1 Melt depth dependence of laser pulse time
图 1 熔化深度和激光脉冲照射时间的关系

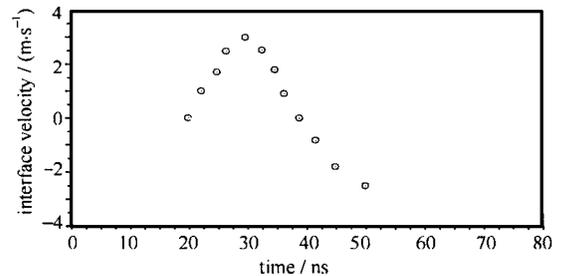


Fig. 2 Liquid/solid interface move velocity dependence of time
图 2 液体/固体界面移动速度和时间的关系

2 Rayleigh-Taylor 不稳定性

在材料熔化和重新固化的过程中, 在液体和固体界面都有一个加速度, 必须有内部的力产生加速度。内部的力有两方面, 一方面是来源于相变, 在相变的过程中, 固体的密度和液体的密度是不同的; 另一方面是来源于热膨胀。在界面加速的过程中, 产生惯性力, 表面张力必须维持表面的平整性, 在惯性力和表面张力之间达到平衡, 这种平衡是不稳定的, 这种不稳定性在流体力学中称之为 Rayleigh-Taylor

不稳定性^[6] (1950 年 G. L. Taylor 明确指出了这种不稳定现象)。

外界的扰动, 界面的不稳定发展经历三个阶段: 线性阶段, 变形阶段和定常阶段。在线性阶段, 界面上的扰动是按指数发展的, λ 是扰动波长; 在变形阶段, 由于扰动, 界面变形, 界面不再平整, 形成上下相似的谐波形状的界面, 界面两种状态的物质相互混合, 经过最后的统计, 达到稳定。

可以用流体力学计算被激光熔化液体在激光作用期间所产生的压力 p , 设参考坐标系固定在液面上。由图 2 可以认为, 液面的加速度是恒定的, 设为 $-a_m \hat{e}_x$, 在非惯性系中, 出现在动量方程中的压力必须加上一个惯性力, 即

$$p = p^* + \rho x \tilde{a}_m \tag{7}$$

式中, p^* 为惯性坐标系中的压力。则连续性方程和动量方程可以表示为

$$\nabla \cdot \tilde{u} = 0 \tag{8}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\tilde{u}) + \nabla(\tilde{u} \cdot \tilde{u}) = -\nabla p / \rho \tag{9}$$

速度 u 和压力 p 分解为平均量和微扰量, 设

$$\tilde{u} = \bar{u} + \tilde{u}'; \quad p = \bar{p} + p' \tag{10}$$

由于液体表面的平均速度为 0, 连续性方程(8)和动量方程(9)变为

$$\nabla \tilde{u}' = 0 \tag{11}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\tilde{u}') = -\nabla p' / \rho \tag{12}$$

只考虑一阶的微扰, 液面的空间微扰量为 $\Gamma \ll 1$, 速度分解为矢量表示为 $\tilde{u}' = (u', v')$ 。一般假设液体表面的微扰为

$$\begin{Bmatrix} \Gamma \\ u' \\ v' \\ p' \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} C \\ u(x) \\ v(x) \\ p(x) \end{Bmatrix} \exp[i(ky - \omega t)] \tag{13}$$

将(13)式代入到连续性方程(11)和动量方程(12)中, 则有

$$\frac{du}{dx} + iKv = 0 \tag{14}$$

$$\begin{Bmatrix} -i\omega u \\ -i\omega v \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} (dp/dx)/\rho \\ iKp/\rho \end{Bmatrix} \tag{15}$$

由式(14)和(15)得到压力 p 的微分方程

$$\frac{d^2 p}{dx^2} = -i\rho\omega \frac{du}{dx} = -\rho K\omega = K^2 p \tag{16}$$

解微分方程(16)得到

$$p(x) = B \exp(-Kx) + D \exp(Kx) \tag{17}$$

由边界条件

$$p(x=0) = 0 \tag{18}$$

$$\frac{dp}{dx} = u' \Big|_{x=0} \tag{19}$$

得到

$$B = 0, \quad D = C\omega^2\rho/K \tag{20}$$

在液面和气体表面, 压力差即表面张力为

$$(p_i^* - p_v^*) = \sigma(1/r) \tag{21}$$

其中

$$p_i^* = (\bar{p} + p' - \rho x a_m) \Big|_{x=\Gamma} \tag{22}$$

$$\bar{p} = p_v^* \tag{23}$$

由(21)、(22)和(23)式得到

$$p'(\Gamma) + \rho\Gamma a_m = \sigma \left(\frac{\partial \Gamma}{\partial y} \right)^2 \quad (24)$$

由(13)、(20)和(24)式得到

$$\omega^2 = (-\rho a_m \kappa + \sigma \kappa^2) / \rho |_{\Gamma=0} \quad (25)$$

从(25)式可知,如果 a_m 足够大,那么 ω 为一虚数;从(13)式可知如果 $-i\omega > 0$,则空间偏移量 Γ 随时间快速增长,破坏平衡,对应的波数为 κ_{\max} ,此时的空间周期为

$$D = 2\pi/\kappa_{\max} = 2\pi(3\sigma/\rho a_m)^{1/2} \quad (26)$$

对于 PET 高分子材料, $\sigma \approx 0.1$, $\rho = 1.3\text{g}/\text{cm}^3$, $a_m = 8 \times 10^7 \text{m}/\text{s}^2$, 得到空间周期为 $D = 10\mu\text{m}$, 和实验中得到 PET 材料大约为 $11\mu\text{m}$ (如图 3) 的周期结构相符合, 实验条件波长 308nm , 激光能量密度 $160\text{mJ}/\text{cm}^2$, 激光脉冲数为 5。这样可以用流体界面的 Rayleigh-Taylor 不稳定性解释这种激光纹理化所产生的周期结构。

3 结 论

用激光和物质作用的热方程,在考虑材料的相变的情况下,计算了材料的熔化和重固化,计算了高分子材料的熔化深度及熔化速度和时间的关系,并用流体界面的 Rayleigh-Taylor 不稳定性解释了激光纹理高分子材料表面形成的 $4\sim 15\mu\text{m}$ 周期结构的形成机理。

参考文献:

- [1] 黄峰,楼祺洪,徐剑秋. 准分子激光高分子材料粘着力机理研究[J]. 强激光与粒子束, 1999, 11(1): 42
- [2] Bauerle D. Laser processing and chemistry[M], second edition. New York: Springer, 1996
- [3] Pedraza A J, Fowlkes J D. Silicon microcolumn arrays grown by nanosecond pulsed-excimer laser irradiation[J]. *Applied Physics Letters*, 1999, 74(16): 2322
- [4] Young Jeff F, Preston J S, Van Driel H M, et al. Laser-induced periodic surface structure. II experiments on Ge, Si, Al, and Brass[J]. *Physics Review*, 1983, B127(2): 1155
- [5] Rayleigh L. Investigation of the character of the equilibrium of an incompressible heavy fluid of variable density[M]. U.K. Cambridge Un Press, 1990. 200
- [6] Taylor G I. The stability of liquid surface when accelerated in a direction perpendicular to their planes [J]. *Proc Roy Soc*, 1950, A201: 192

Rayleigh-Taylor Instability During Laser Induced Periodic Structure

HUANG Feng, LOU Qirong, LEI Bo, DONG Jing-xing, WEI Yun-rong, FAN Dian-yuan

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences,

P. O. Box 800-216, Shanghai 201800, China)

ABSTRACT: The melt depth and liquid/solid interface move velocity during the laser induced periodic structure were numerical calculated by laser heating model. The melt and re-solidify phenomena of the substrate is investigated, the origination laser induced periodic structure is Rayleigh-Taylor instability, and the spatial period is calculated by hydrodynamic equations.

KEY WORDS: heat model; laser induced periodic structure; instability

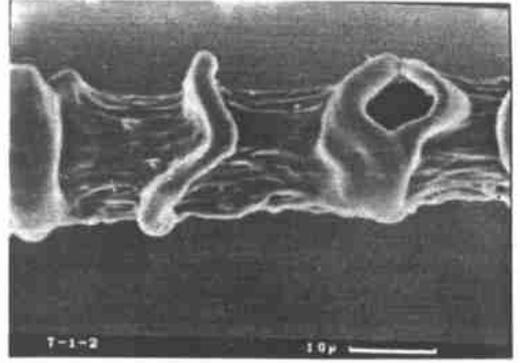


Fig. 3 Characteristic morphology on the fiber surface treated by UV laser.

图 3 激光处理高分子纤维表面特征形态