

УДК 536.4

АНАЛИЗ ВЗРЫВНОГО ВСКИПАНИЯ ПЛЁНКИ ЖИДКОСТИ НА ИМПУЛЬСНО НАГРЕВАЕМОЙ ПОДЛОЖКЕ

А. А. Самохин, Е. А. Молоков

Рассматривается взрывное вскипание тонкой пленки жидкости на подложке, нагреваемой наносекундным лазерным импульсом, которое приводит к отлету пленки от подложки. Показано, что для объяснения экспериментальных данных [1] по максимальной скорости отлета пленки необходимо учитывать особенности испарительной кинетики в возникающей полости, а также эффект “встрягивания”, связанный с нелинейным тепловым расширением пленки непосредственно перед ее отрывом от подложки.

Взрывное вскипание жидкости на импульсно нагреваемых поверхностях является предметом многочисленных теоретических и экспериментальных исследований и различных практических приложений (см., например, [1–7] и цитируемую там литературу). В работе [1] были получены интересные экспериментальные результаты по взрывному вскипанию тонкой плёнки изопропанола на кремниевой подложке и динамике её последующего отлёта от этой подложки, нагреваемой лазерным импульсом с длительностью 7 нс. Однако теоретическое объяснение этих результатов, приведённое в [1], не является, на наш взгляд, достаточно полным и требует более детального описания. Целью настоящей работы является проведение такого теоретического анализа с учётом дополнительных эффектов, которые в [1] не рассматривались.

Теоретическое исследование эксперимента [1] естественным образом разделяется на два этапа, разделённых моментом достижения температуры предельного перегрева, после которого начинается взрывное вскипание. Первый этап состоит в анализе динамики нагрева системы плёнка + подложка, которое описывается уравнением теплопроводности с источником, определяемым поглощаемой подложкой интенсивностью лазерного

импульса $I(t) = A \cdot I_0(t)$, где A – поглощательная способность подложки. Для подложки, расположенной при $z > 0$, это уравнение имеет вид

$$\frac{\partial T_2}{\partial t} = \frac{\kappa_2}{c_2 \rho_2} \frac{\partial^2 T_2}{\partial z^2} + \frac{\alpha}{c_2 \rho_2} e^{-\alpha \cdot z} \cdot I(t), \quad (1)$$

где величины κ_2 , c_2 , ρ_2 , α обозначают соответственно теплопроводность, теплоёмкость, плотность подложки и коэффициент поглощения излучения в подложке. Для простоты все оптические и теплофизические параметры здесь предполагаются постоянными.

Плётка считается прозрачной для лазерного излучения и её нагрев осуществляется контактным способом, т.е. температура в ней определяется уравнением, аналогичным (1), но без объёмного источника. Вдали от границы раздела температура плётки и подложки считается постоянной $T_1 = T_2 = T_0$ и равной начальному значению T_0 . На границе раздела сред имеет место непрерывность теплового потока $\kappa_2 \left. \frac{\partial T_2}{\partial x} \right|_{z_p} = \kappa_1 \left. \frac{\partial T_1}{\partial x} \right|_{z_p}$ и равенство температур $T_1|_{z_p} = T_2|_{z_p}$, но в более общем случае на границе допускается скачок температуры $T_{s_2} - T_{s_1} > 0$, определяемый условием $HTC \cdot (T_2 - T_1)|_{z_p} = \kappa_2 \left. \frac{\partial T_2}{\partial x} \right|_{z_p}$, где HTC обозначает коэффициент теплопередачи.

Оценим для начала эволюцию температуры поверхности подложки без учёта наличия плётки и объёмного характера поглощения по известной формуле для поверхностного источника нагрева:

$$T_s(t) = \frac{1}{\rho_2 c_2 \sqrt{\chi_2 \pi}} \int_0^t I(t - \tau) \frac{d\tau}{\sqrt{\tau}} + T_0. \quad (2)$$

При плотности поглощаемой энергии $E = 39$ мДж/см² к моменту времени $t = 0$ нс (момент вскипания) температура поверхности подложки достигает $T_v = 0.95 T_{cr}$. Здесь T_{cr} – критическая температура жидкости плётки. Численный расчёт по уравнению (1) для данного случая даёт такие же значения T_{s_2} , что и по формуле (2) с расхождением менее одного процента. Получаемая с помощью этих формул зависимость $T_s(t)$ при $I(t) = I_m \exp(-(t - t^*)^2 / \Delta t^2)$; $t^* \approx 3 \cdot \Delta t$; $\Delta t = 4$ нс; $\chi_2 = 0.9$ см²/с; $\rho_2 = 2.3$ г/см³; $c_2 = 0.7$ Дж/г·К; $E = \sqrt{\pi} \cdot I_m \cdot \Delta t$ показана на рис. 1 (кривая 1). Кроме того, расчёт по уравнению (1) показывает, что учёт влияния плётки изопропанола слабо (порядка одного процента) сказывается на динамике нагрева по сравнению с кривой (1) из-за малости температуропроводности изопропанола по сравнению с кремнием. Влияние объёмного

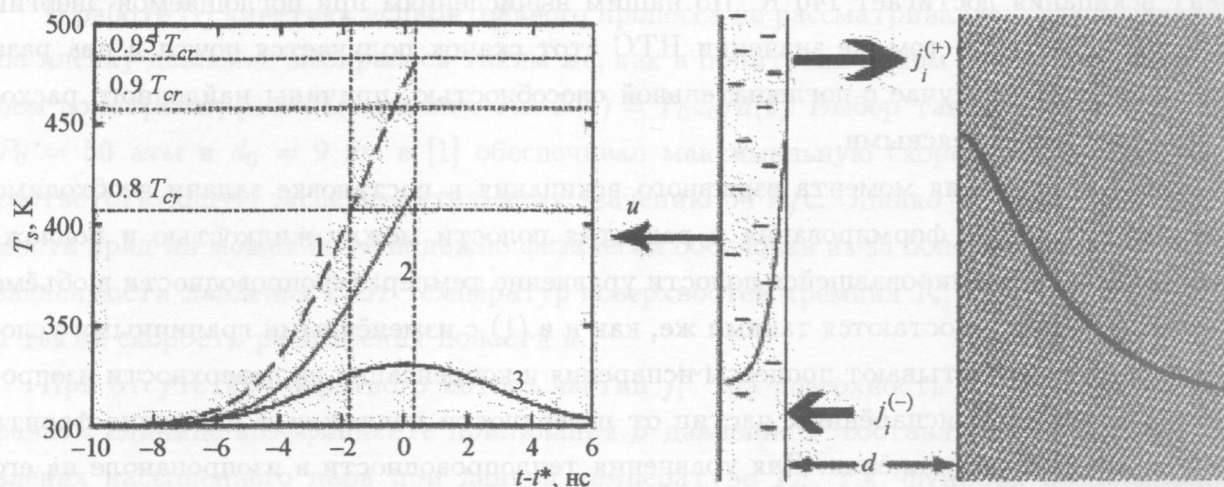


Рис. 1. Температура поверхности подложки при $E = 39$ мДж/см² для случаев: $HTC = 10^7$ Вт/м²К (кривая 1) и $HTC = \infty$ (кривая 2), а также форма лазерного импульса (кривая 3).

Рис. 2. Система пленка – подложка после взрывного вскипания и отлета пленки.

характера поглощения при $\alpha > 10^5$ см⁻¹ также слабо сказывается на поведении кривой (1).

Температура вскипания пленки T_v может, в зависимости от скорости нагрева, меняться в диапазоне от температуры нормального кипения до T_{cr} . Чем меньше температура вскипания T_v , тем меньше поглощаемая энергия в соответствии с линейной зависимостью T_s в формуле (2) от I_m при заданном значении t . Экспериментальное значение плотности падающей энергии составляет $E_0 = 138$ мДж/см² [1], что соответствует поглощательной способности $A = E/E_0 \leq 0.25$. Такое значение A оказывается заметно меньше поглощательной способности A_λ , определяемой действительной ($n = 4.2$) и мнимой ($k = 0.5$) частями показателя преломления для данной длины волны ($\lambda = 532$ нм) [8] $A_\lambda = (n - 1)^2 + k^2 / (n + 1)^2 + k^2 = 0.6$.

В работе [1] вопрос о поглощательной способности не обсуждается и причины отмеченного выше расхождения между A и A_λ остаются неясными. Очевидно, что использование в расчётах A_λ вместо A при экспериментальном значении $E_0 = 138$ мДж/см² приведёт к более раннему моменту вскипания по сравнению с экспериментом. По-видимому, в связи с этим авторы [1] предполагают наличие скачка между температурами изопропанола и кремния на границе раздела сред, обусловленного конечным значением $HTC = 10^7$ Вт/м²К. В этом случае в [1] рассчитанный скачок температуры в мо-

мент вскипания достигает 140 К. По нашим вычислениям при поглощаемой энергии $E = 35$ мДж/см² и том же значении НТС этот скачок получается почти в два раза меньше. Как и в случае с поглощательной способностью, причины найденного расхода остаются неясными.

После достижения момента взрывного вскипания в постановке задачи необходимо учитывать процесс формирования и развития полости между жидкостью и подложкой. В случае сформировавшейся полости уравнение температуропроводности в объёме плёнки и подложки остаются такими же, как и в (1) с изменёнными граничными условиями, которые учитывают процессы испарения и конденсации на поверхности изопропанола, отражение испарённых частиц от поверхности подложки и движение фронта испарения в глубину плёнки. Для уравнения теплопроводности в изопропанол на его внутренней поверхности граничное условие в упрощённой форме может быть записано в виде:

$$\kappa_1 \left. \frac{\partial T_{s1}}{\partial z} \right|_{z=0} = [j_1^{(+)}(T_{s1}) - j_1^{(-)}(T_{s1}, u)] \cdot L,$$

где величина в квадратных скобках обозначает разность между потоками массы испарённых и вернувшихся на поверхность изопропанола частиц, L – удельная теплота испарения изопропанола. Вдали от критической точки полагалось $L = 0.6$ кДж/г.

На поверхности подложки приближённо можно ставить условие теплоизолированности $\kappa_2 \partial T_{s2} / \partial z|_{z=0} = 0$ из-за малости суммарного теплового потока на границе даже в случае полной аккомодации по энергии для взаимодействующих с поверхностью частиц.

Скорость расширения паровой полости, которая предполагается равной скорости плёнки u , определяется суммарным воздействием внутреннего давления на плёнку изопропанола и внешнего атмосферного давления P_a . Внутреннее давление на плёнку $P = j_2^{(+)} + j_2^{(-)}$ зависит от суммарного потока импульса, связанного с процессами испарения ($j_2^{(+)}$) и конденсации ($j_2^{(-)}$). В соответствии с этим движение плёнки с толщиной h как целого определяется следующим уравнением

$$h\rho_1 \frac{du}{dt} = h\rho_1 \frac{d^2}{dt^2} d(t) = P(T_{s2}, T_{s1}, u) - P_a, \quad (3)$$

где ускоряющее давление P , в частности, зависит от скорости движения плёнки u . Необходимость учёта такой зависимости в подобном случае уже отмечалась в [6]. Отсутствие явной зависимости P от ширины полости обусловлено предположением о малом влиянии пролётного запаздывания на формирование основной части обратных потоков на поверхность изопропанола при малой величине $d < 1$ мкм.

В работе [1] кинетика испарительного процесса не рассматривалась, а действующее на плёнку давление выбиралось таким же, как в политропическом процессе с показателем политропы, равным единице, т.е. $P(t) = P_0 d_0/d(t)$. Выбор такой зависимости при $P_0 = 50$ атм и $d_0 = 9$ нм в [1] обеспечивал максимальную скорость отлёта плёнки, соответствующую экспериментальному значению 50 м/с. Однако выбор такой зависимости вряд ли может быть надёжно физически обоснован из-за более сложной реальной зависимости давления P от температур поверхностей кремния T_{s2} и изопропанола T_{s1} , а также скорости расширения полости u .

При отсутствии обратного потока частиц $j_1^{(-)}$ на поверхность изопропанола и при равном единице коэффициенте прилипания β давление P составляет половину от давления насыщенного пара при данной температуре T_{s1} , т.к. функция распределения испарённых частиц по нормальной компоненте скорости

$$f^{(+)}(v, T) = \sqrt{m/2\pi kT} \cdot \exp(-mv^2/kT)$$

является максвелловской в полупространстве скоростей (“полумаксвелл”). Поскольку размер полости на стадии ускорения плёнки мал по сравнению с длиной свободного пробега испарённых частиц, то обратный поток на поверхность изопропанола определяется процессом отражения испарённых частиц от поверхности кремния.

В случае зеркально упругого отражения на поверхность изопропанола вернутся только те частицы, нормальная компонента скорости которых при испарении превышала удвоенную скорость отлёта плёнки u . С учётом этого обстоятельства для обратных потоков массы, импульса на поверхность изопропанола соответственно имеем

$$j_1^{(-)} = \rho(T_{s1}) \int_{2u}^{\infty} (v - 2u) \cdot f^{(+)}(v, T_{s1}) dv, \quad (4a)$$

$$j_2^{(-)} = \rho(T_{s1}) \int_{2u}^{\infty} (v - 2u)^2 \cdot f^{(+)}(v, T_{s1}) dv. \quad (46)$$

Решение уравнения движения плёнки (3) с учётом уравнения теплопроводности (1) и выражений для суммарных потоков частиц (4a) и импульса (46) даёт для её скорости и ускоряющего её давления следующие зависимости от времени, которые показаны на рис. 3, 4 при различных толщинах плёнки h и температурах вскипания T_v в один и тот же момент времени $t = t^*$. Одновременность вскипания при различных T_v обеспечивается за счёт соответствующего различия в величинах поглощаемой энергии лазерного импульса.

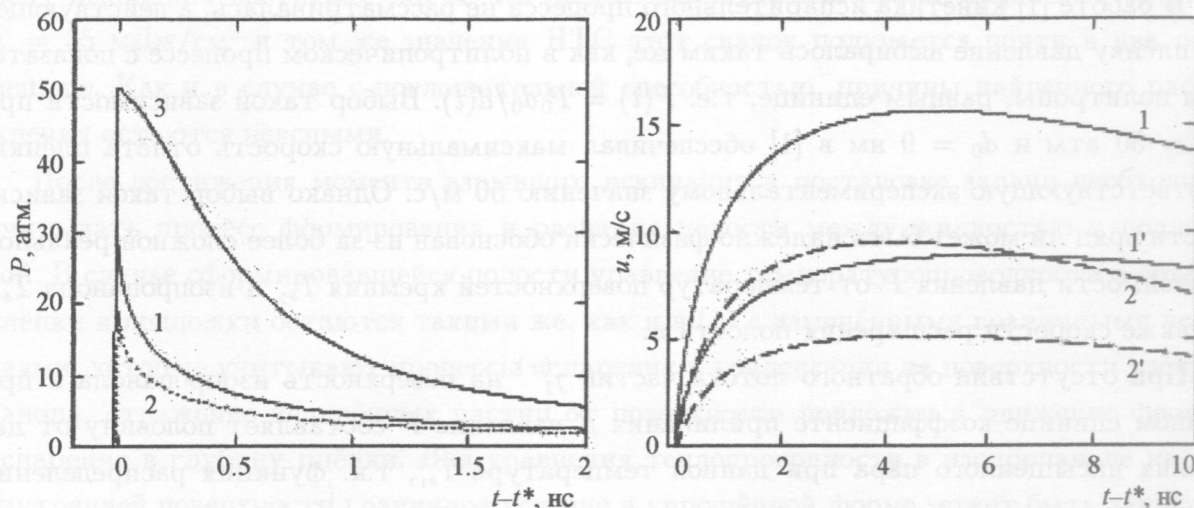


Рис. 3. Паровое давление на пленку при $T_v = 0.95T_{cr}$ и $T_v = 0.9T_{cr}$ (кривые 1 и 2), кривая 3 – поведение давления, рассчитанное по модели [1].

Рис. 4. Зависимость скорости отлета пленки от времени в случае $h = 100$ нм при $T_v = 0.95T_{cr}$ и $T_v = 0.9T_{cr}$ (кривые 1 и 2), и в случае $h = 200$ нм при $T_v = 0.95T_{cr}$ и $T_v = 0.9T_{cr}$ (кривые 1' и 2').

В представленных расчётах предполагалось, что начальный этап формирования полости является очень коротким, что соответствует мгновенному росту давления на рис. 3, 4. Феноменологически конечность этого переходного процесса можно учесть следующим образом. Предположим, что нарастание давления и изменение теплового потока со стороны подложки на плёнку при достижении температуры T_v определяется одной и той же модельной зависимостью от времени, которую представим в виде $P = P_v \cdot \varphi(t)$; $q = q_v \cdot \varphi(t)$, где $\varphi(t) = \sin^2[\pi \cdot (t - t^*)/2\tau]$, $t - t^* \leq \tau$. Величина τ характеризует время формирования сплошной микрополости, которое предполагается малым по сравнению с наносекундным интервалом. Конечность времени формирования полости позволяет учесть дополнительный подогрев плёнки за счёт её сжатия нарастающим давлением (piston effect). Однако расчёты показывают, что влияние этого эффекта на общую картину не является значительным.

Из произведённых расчётов видно, что максимальная рассчитанная скорость отлёта плёнки оказывается в несколько раз меньше максимального экспериментального значения из [1]. Из неучтённых факторов увеличению u могут способствовать, в частности, дополнительный подогрев плёнки за счёт энергетической аккомодации отражённых от

подложки частиц, уменьшение толщины плёнки за счёт её испарения, изменение тепловых параметров плёнки вблизи границы предельного перегрева, а также нелинейное тепловое расширение прогретой части плёнки непосредственно перед началом взрывного вскипания.

Из перечисленных факторов наиболее важным, по-видимому, является последний, в результате действия которого центр массы плёнки может приобретать заметную нормальную к поверхности скорость непосредственно перед началом взрывного вскипания (эффект “встряхивания”). Оценки показывают, что этот эффект может вносить вклад в результирующую скорость плёнки, сравнимый с тем, которая обеспечивается за счёт процесса взрывного вскипания, в то время как другие эффекты дают вклад в увеличение максимальной скорости порядка 20–30%. Действительно, если слой, прогретый на глубину порядка 10 нм, увеличит свою толщину вдвое за время меньше наносекунды, то вследствие этого центр массы плёнки приобретёт скорость, превышающую 10 м/с. Возникающее при этом (ускоряющее) давление на плёнку составляет величину порядка десятка атмосфер, а ускорение плёнки имеет порядок 10^{12} см/с². Такая величина ускорения характерна для эффекта стряхивания механических микрочастиц с поверхности кремния под воздействием поверхностной акустической волны, возбуждаемой лазерным импульсом [9].

Отметим в заключение, что из использованной в [1] теоретической модели следует постоянство величины $V_m \sqrt{h} = \text{const}$ при изменении толщины плёнки и прочих равных условиях. Из работы [1] видно, что такое соотношение в эксперименте не выполняется, поскольку при толщинах плёнки $h_1 = 97$ нм и $h_2 = 227$ нм максимальные скорости равны соответственно $V_{m1} = 50.9$ м/с и $V_{m2} = 40.1$ м/с, т.е. $V_{m1}/V_{m2} = 1.27$, тогда как $\sqrt{h_2/h_1} = 1.53$. Если в нашем рассмотрении ограничиваться скоростями, которые плёнка получает только за счёт испарительного процесса, то $V_{m1}/V_{m2} = 18.6/9.4 = 1.98$, где соответствующие значения максимальных скоростей (в м/с) для данных толщин плёнки получены с учётом вышеупомянутых дополнительных кинетических факторов. При учёте добавки к скорости плёнки ΔV_m , приобретаемой за счёт нелинейного теплового расширения её прогретой части это отношение приближается к экспериментальному значению в предположении, что ΔV_m слабо зависит от толщины плёнки h . В этом случае количественное согласие с экспериментом достигается при $\Delta V_m \sim 25$ м/с.

Таким образом, полученные результаты демонстрируют многофакторность исследуемого явления, которое определяется совокупностью кинетических и гидродинамических эффектов, возникающих при глубоком вторжении в метастабильную область пере-

гретых состояний жидкости и её последующего взрывного вскипания. Для более точного учёта эффекта “встряхивания” необходимо решать полную систему гидродинамических уравнений с соответствующим уравнением состояния, включающим перегретую метастабильную область. Очень важно также получение более полных экспериментальных данных по динамике отлёта плёнки и возникающим при этом давлению в подложке при различных толщинах плёнки и скоростях нагрева, что может дать новую информацию о поведении вещества в состоянии сильного перегрева и кинетики неравновесных фазовых превращений.

Настоящая работа поддержана грантом РФФИ N 06-08-01440.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] F. Lang, P. Leiderer, New Journal of Physics **8**, 14 (2006).
- [2] D. Kim, H. K. Park, C. P. Grigoropoulos, International Journal of Heat and Mass Transfer **44**, 3843 (2001).
- [3] S. I. Kudryashov, K. Lyon, S. Shukla, et al., J. Appl. Phys. **100**, 056103 (2006).
- [4] Ю. Д. Варламов, Ю. П. Мещеряков, С. И. Лежнин и др., ПМТФ **48**(4), 79 (2007).
- [5] В. В. Глазков, В. С. Григорьев, В. Г. Жилин и др., ТВТ **44**, 913 (2006).
- [6] А. А. Самохин, Квантовая электроника **36**, 684 (2006).
- [7] А. А. Самохин, С. М. Климентов, П. А. Пивоваров, Квантовая электроника **37**, 967 (2007).
- [8] И. С. Григорьев, Е. З. Мейлихов, Физические величины (Энергоатомиздат, М., 1991).
- [9] А. А. Коломенский, А. А. Мазнев, Письма в ЖТФ **17**(13), 62 (1991).

Институт общей физики
им. А.М. Прохорова РАН

Поступила в редакцию 11 июля 2008 г.