

# 激光等离子体去除微纳颗粒的热力学研究\*

罗菊 冯国英 韩敬华<sup>†</sup> 沈雄 张丽君 丁坤艳

(四川大学电子信息学院, 四川 610065)

(2019年12月20日收到; 2020年2月1日收到修改稿)

微杂质污染一直是影响精密器件制造质量和使用寿命的关键因素之一. 对于微纳米杂质颗粒用传统的清洗方式(超声清洗等)难以去除, 而激光等离子体冲击波具有高压特性, 可以实现纳米量级杂质颗粒的去除, 具有很大的应用潜力. 本文主要研究了激光等离子体去除微纳颗粒过程中的热力学效应: 实验研究了激光等离子体在不同脉冲数下对 Si 基底上 Al 颗粒去除后的颗粒形貌变化, 发现大颗粒会发生破碎而转变成小颗粒, 一些颗粒达到熔点后发生相变形成光滑球体, 这源于等离子体的热力学效应共同作用的结果. 为了研究微粒物态转化过程, 基于冲击波传播理论研究, 得到冲击波压强与温度特性的演化规律; 同时, 利用有限元模拟方式研究激光等离子冲击波压强和温度对微粒作用规律, 得到了颗粒内随时间变化的应力分布和温度分布, 并在此基础上得到等离子体对颗粒的热力学作用机制.

**关键词:** 等离子体冲击波, 颗粒破碎, 颗粒相变, 热力学分析**PACS:** 42.25.Bs, 52.77.Bn, 42.70.Hj**DOI:** 10.7498/aps.69.20191933

## 1 引言

随着微电子工业的进步, 核心部件的特征尺寸不断缩小, 使得部件表面的干净程度尤为重要<sup>[1]</sup>, 如: 高功率设备中, 光学元件表面污染会导致激光束质量发生恶化, 对光学元件造成损伤<sup>[2]</sup>; 在半导体工业中, 当粘着的颗粒特征尺寸大于最小特征尺寸的 1/4 时, 会导致器件失效等<sup>[3]</sup>. 针对这些问题以及更高效的去除, 提出激光等离子体冲击波清洗(LSC)技术, 该技术是在干式清洗基础上衍生出的一种比较先进的清洗技术, 主要优点有: 较大的冲击压强有利于颗粒的去除; 等离子体光谱更有利于纳米颗粒的吸收; 非接触式清洗避免了基底的损伤; 以及清洗面积有很大的提高等<sup>[4]</sup>. 针对激光等离子体冲击波去除技术, 国内外研究主要是基于冲击波力学效应进行分析, 2001年, Lee 和 Watkins<sup>[5]</sup>

去除粒径约 1  $\mu\text{m}$  的金属钨颗粒, 解决了利用激光直接辐照对钨颗粒清洗效率不高的难题; 2002年, Cetinkaya 等<sup>[3]</sup>去除 0.5—1.2  $\mu\text{m}$  的  $\text{SiO}_2$ , 提出了颗粒去除三种不同的作用机理; 2016年, 韩敬华等<sup>[4]</sup>模拟了冲击波, 计算了去除条件. 实际上, 由于等离子体本身具有很高的温度, 所以需要将两者结合考虑, 2005年, Lim 等<sup>[6]</sup>深入分析等离子体冲击波传输理论, 研究了不同激光参数下的冲击波演化的规律, 对于微米量级的颗粒除去结果与冲击波的动力学发展过程进行了比较, 证实微纳米颗粒的去除过程与激光诱导的冲击波动力学有很强的相关性以及激光等离子体具有高温高压特性; 2003年 Vanderwood 和 Cetinkaya<sup>[7]</sup>对有图案的基板上进行纳米颗粒的去除实验, 实验中证实损伤是由于热效应和机械效应的相互作用造成的. 虽然现在对冲击波去除微纳颗粒去除已经进行了大量的研究<sup>[8-17]</sup>, 但是大部分都是集中于力效应的研究, 很

\* 国家自然科学基金(批准号: 11574221)和四川省重点研发计划(批准号: 2019YFG0263)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: [hjh\\_scu@163.com](mailto:hjh_scu@163.com)

少考虑去除热效应以及两者综合效应. 本文将在冲击波去除微纳米颗粒的基础上, 讨论力效应对颗粒产生的作用以及热效应对颗粒产生的作用, 并且将两者结合起来讨论热力学效应对颗粒的物态变化产生的影响.

## 2 实验方法

### 2.1 实验装置图

实验通过强激光束击穿空气产生等离子体冲击波来去除光滑 Si(硅) 样品表面上的 Al(铝) 微纳米颗粒. 实验使用的是镭宝公司生产的 Nd: YAG 脉冲激光器 (输出波长为 1064 nm, 脉宽为 12.4 ns, 重复频率为 5 Hz, SGR 系列), 实验装置示意图如图 1 所示.

激光脉冲通过分光片一部分输入能量计实时检测, 另一部分通过焦距为 200 mm 的聚焦镜进行聚焦, 并且使其焦点位于实验样品的正上方, 可以通过调整激光脉冲能量和焦点到基底的高度  $d$  来调节激光等离子体冲击波特性 (保持激光参量、实验样品等参数不变, 通过调整激光焦点到基底的高

度  $d$  进行实验, 对去除结果进行观察, 得到在不同情况: 基底损坏、颗粒去除、颗粒相变等下所对应的高度  $d$ ), 从而实现不同的去除效果.

### 2.2 实验样品制备

将 Si 片放在去离子水中超声清洗 30 min; 在乙醇溶液中放少量的直径为 100 nm 的 Al 粉进行超声清洗, 再用磁力搅拌器搅拌 3 h; 将清洗后的 Si 片放置在得到的悬浮液中直到乙醇溶液挥发. 将得到的试验样品在电子扫描电镜 (scanning electron microscope, SEM) 下进行观察, 得到涂有 Al 纳米颗粒的原始样品的 SEM 图如图 2 所示.

### 2.3 实验结果

实验在温度 28 °C, 空气相对湿度 24% RH 的实验环境下, 进行微纳米颗粒的去除实验, 对实验结果进行光学显微镜以及电子扫描电镜观察. 实验中, 取  $d$  为 0.3 cm, 能量为 430 mJ, 在不同脉冲个数下进行激光等离子体冲击波去除实验研究, 得到的实验结果在光学显微镜下进行观察, 得到如图 3 所示.

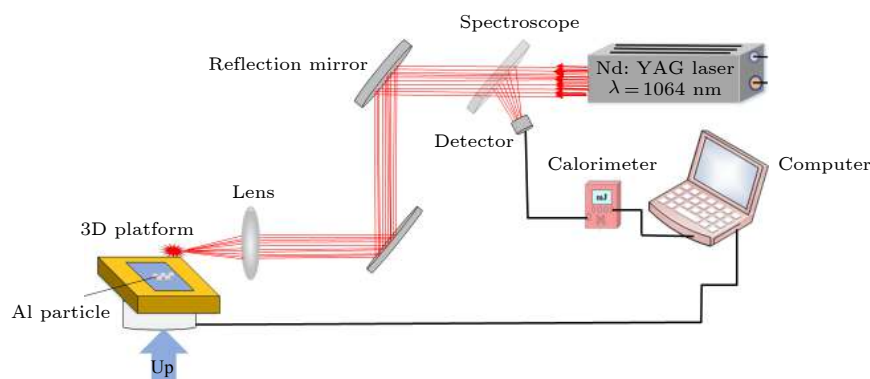


图 1 实验装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of experimental setup.

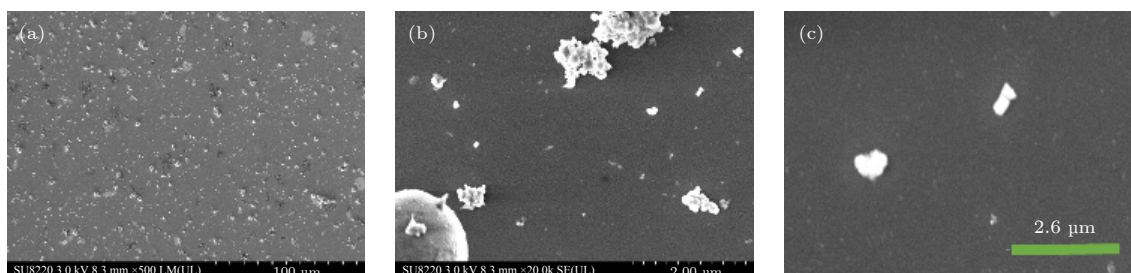


图 2 原始样品的 SEM 图 (a) 整体图; (b), (c) 局部放大图

Fig. 2. SEM images of original samples: (a) Overall picture; (b), (c) partial enlarged pictures in (a).

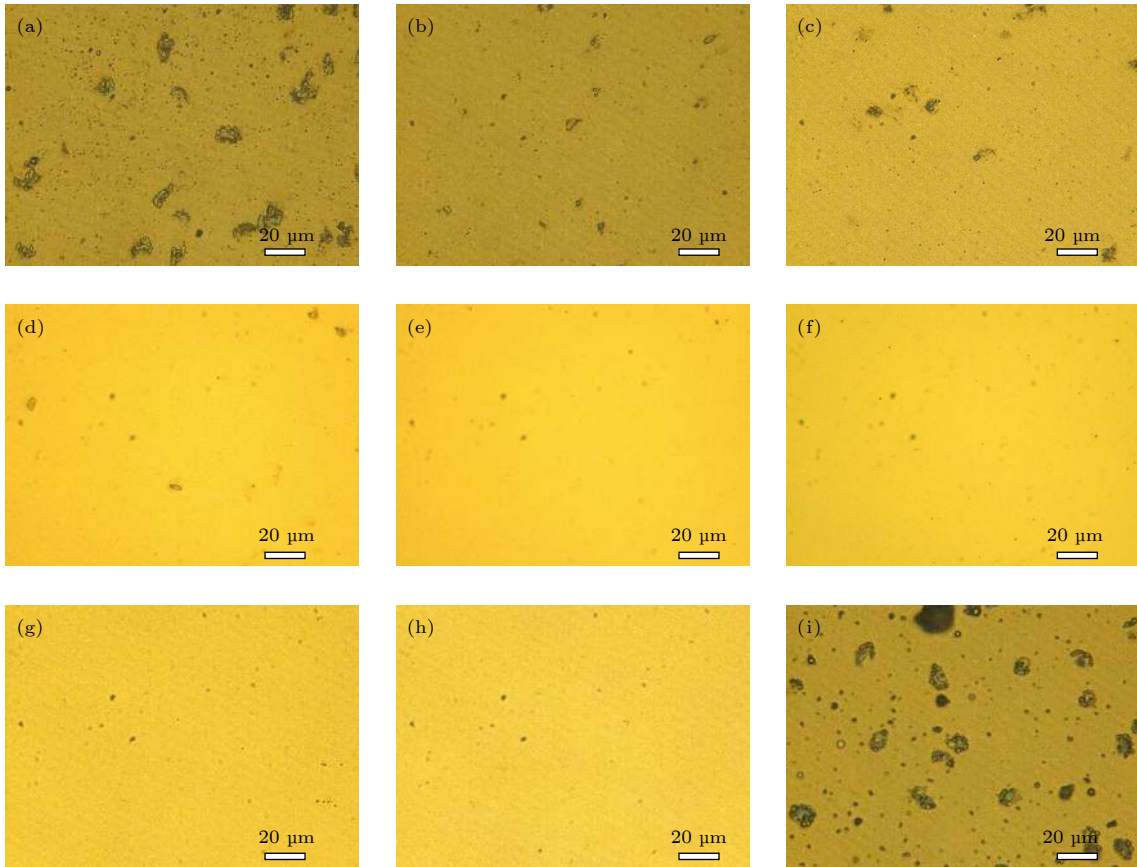


图3 光学显微镜2000倍下不同脉冲数的实验图 (a) 1; (b) 2; (c) 5; (d) 10; (e) 15; (f) 20; (g) 30; (h) 50; (i) 涂有Al颗粒的原始样品

Fig. 3. Experimental pictures of different pulse numbers at 2000 x optical microscope: (a) 1; (b) 2; (c) 5; (d) 10; (e) 15; (f) 20; (g) 30; (h) 50; (i) original sample coated with Al particles.

将1个脉冲作用(图3(a))后的光学显微镜图和原始图(图3(i))进行比较,可以发现,样品表面小颗粒个数明显增加,大颗粒也有减小,颗粒粒径大约从 $4\ \mu\text{m}$ 减小到 $2\ \mu\text{m}$ 左右.将2个脉冲(图3(b))和5个脉冲(图3(c))作用后的光学显微镜图同1个脉冲后的相比较,可以发现,2和5个脉冲作用后的样品表面颗粒减少了很多且粒径也减小了许多,大约从 $2\ \mu\text{m}$ 减小到 $1\ \mu\text{m}$ 左右.到第10个脉冲时(图3(d)),样品表面颗粒几乎只有零散的几个颗粒,粒径也减小到 $500\ \text{nm}$ 左右.到15脉冲(图3(e))以至脉冲数(图3(f)—图3(h))更多时,样品表面颗粒在光学显微镜2000放大倍数下看不见.为了得到随着脉冲数的增加,样品表面颗粒发生破碎后更微观的形貌,对激光作用后的实验样品进行电子扫描电镜观察,得到的结果如图4所示.

从1个脉冲(图4(a))和2个脉冲(图4(b))作用后的电子扫描电镜图来看,样品表面破碎后的颗粒粒径比较大,大颗粒在 $500\ \text{nm}$ 左右,且样品表

面残余的颗粒较多.在5个脉冲(图4(c))、10个脉冲(图4(c))和15个脉冲(图4(e))去除后的破碎图可以看出,此时样品表面破碎的颗粒最大粒径颗粒分别在 $80\text{--}200\ \text{nm}$ 之间,相对图4(b)2个脉冲去除后残留的颗粒明显减小了很多,但是细碎颗粒的增加使样品表面看起来更加致密.增加脉冲个数到20个(图4(f)),可以发现样品表面最大颗粒粒径已经减小到 $60\ \text{nm}$ 左右,并且颗粒继续减少.继续增加脉冲数到30(图4(g))和50个脉冲时(图4(h)),最大颗粒粒径减少到 $20\ \text{nm}$ 左右.到50个脉冲时,样品表面残余的颗粒已经很少.实验结果表明:样品表面颗粒在冲击波作用下颗粒可以去掉,同时在力的作用下会发生破碎,破碎使样品表面颗粒变得更加致密,破碎也使样品表面需去除的颗粒进一步减小,而颗粒越小,在相同条件下越难去除.

冲击波不仅能使颗粒发生破碎,其产生的热也能使颗粒发生相变,破碎和相变如图5所示.破碎

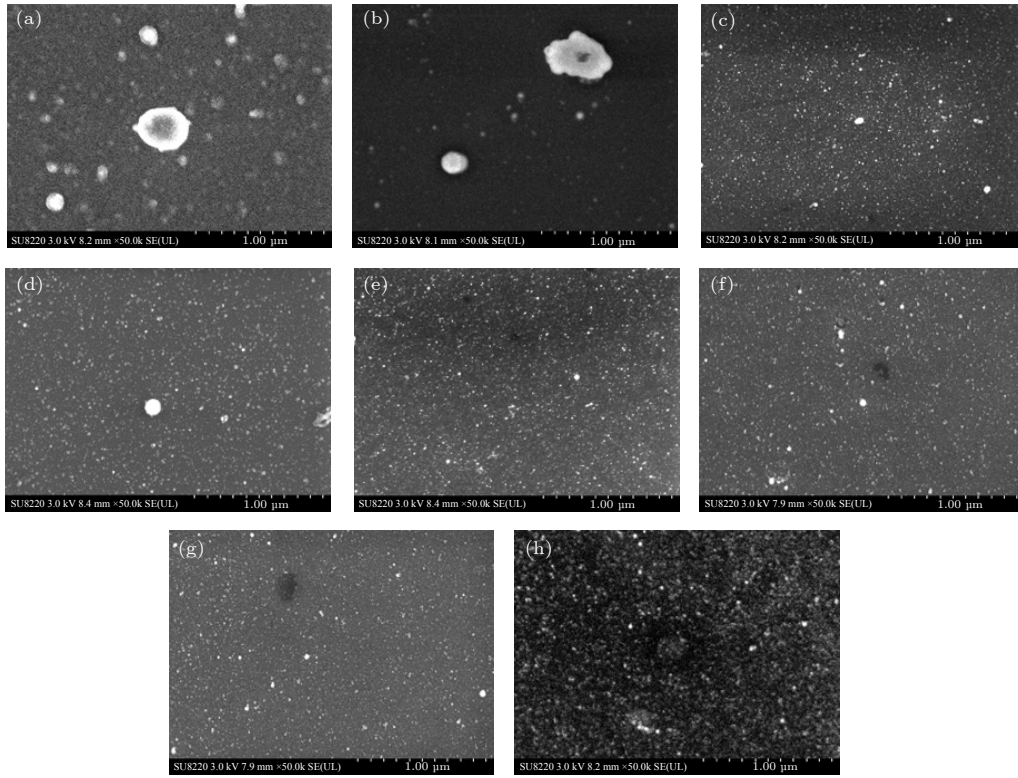


图 4 不同脉冲下颗粒去除情况的 SEM 图 (a) 1; (b) 2; (c) 5; (d) 10; (e) 15; (f) 20; (g) 30; (h) 50  
 Fig. 4. SEM images of particle removal under different pulses: (a) 1; (b) 2; (c) 5; (d) 10; (e) 15; (f) 20; (g) 30; (h) 50.

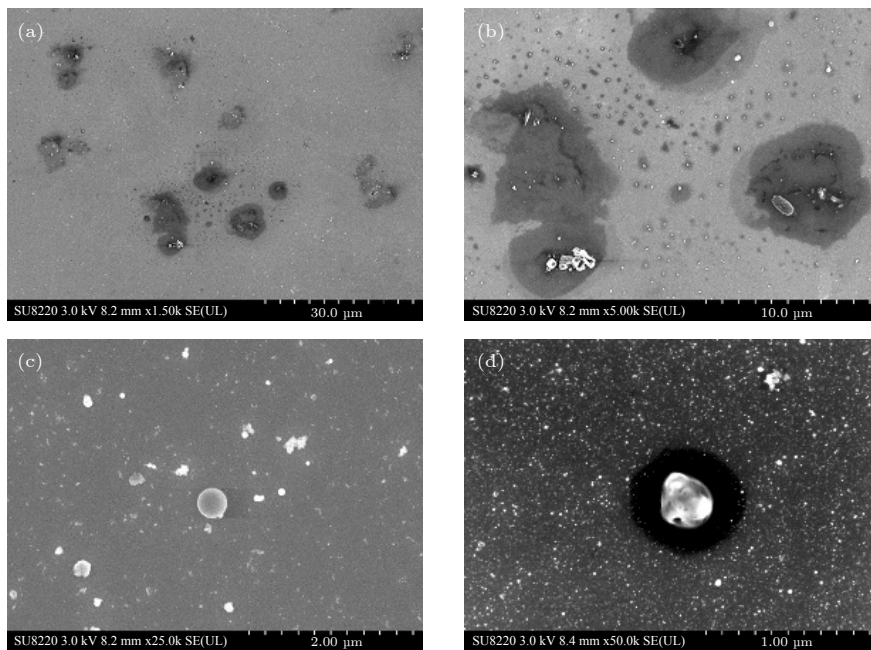


图 5 颗粒破碎和相变现象的 SEM 图 (a) 破碎; (b) 破碎的放大图; (c) 相变 1; (d) 相变 2  
 Fig. 5. SEM images of particle fragmentation and melting phenomenon: (a) Fragmentation; (b) the enlargement of fragmentation in (a); (c) phase transition 1; (d) phase transition 2.

主要分为两种: 一种是当大颗粒去除时或未去除时发生破碎导致的, 此时破碎的颗粒在黑斑附近形成环状的印记 (黑斑: 大颗粒去除后的残留), 如图 5(a)

和图 5(b) 所示 (图 5(b) 是图 5(a) 局部放大); 另一种是在颗粒去除过程中, 一些颗粒在冲击波作用下发生破碎, 生成更小的颗粒, 此时破碎的颗粒四处

散落, 没有规则, 如图 3 和图 4 所示. 颗粒的破碎会使样品表面小颗粒增多, 导致去除难度增加. 相变也主要分为两种: 一种是当冲击波作用到颗粒时, 颗粒达到熔点, 直接发生相变, 如图 5(c) 所示; 另一种是, 大颗粒去除后在黑斑附近残留的细碎颗粒, 再一次在冲击波的力和热作用下发生相变, 如图 5(d) 所示. 将图 5 和图 2 进行比较, 可以发现相变后的颗粒与原始颗粒存在差异, 原始大颗粒是由更小颗粒团聚而成, 或者大颗粒 (可能是制作样品过程中形成的球状物) 上面黏附着小颗粒或者小颗粒形成的团聚物, 而相变颗粒成光滑球体有大有小, 且球体上无比较大的颗粒黏附. 同时, 熔化后的颗粒粒径大小存在差异, 且大颗粒比较容易去除, 小颗粒越难去除 (需要克服熔化颗粒与基底的黏合力). 由以上实验可见, 等离子体冲击波作用后, 颗粒在高压高温下, 会使颗粒发生破碎和相变, 因此, 需要将力和热效应综合研究.

### 3 理论分析

微观等离子体的形成过程会在极短的时间内, 沉积大量的激光脉冲能量, 从而使其具有高压高温特性, 在这种效应的综合下, 颗粒会发生去除、破碎和相变, 下面分别进行研究.

#### 3.1 力学效应分析

激光等离子体向外膨胀, 从而形成等离子体冲击波, 其传播可以表示为 [18,19]

$$R(t) = M_0 c t \left\{ 1 - \left( 1 - \frac{1}{M_0} \right) \exp \left[ -\alpha \left( \frac{R_0}{c t} \right)^{\frac{3}{5}} \right] \right\} + R_0, \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{dR}{dt} &= U(t) \\ &= M_0 c \left\{ 1 - \left( 1 - \frac{1}{M_0} \right) \exp \left[ -\alpha \left( \frac{R_0}{c t} \right)^{\frac{3}{5}} \right] \right. \\ &\quad \left. \times \left[ 1 + \frac{3}{5} \alpha \left( \frac{R_0}{c t} \right)^{\frac{3}{5}} \right] \right\}, \quad (2) \end{aligned}$$

式中,  $R$  表示冲击波传播半径;  $U$  表示冲击波波前传输速度, 是经冲击波传播半径对时间  $t$  进行求导得到的;  $c$  是声速;  $\alpha$  是常量气质, 此处取  $4/3$ ;  $M_0$  是爆炸形成冲击波的瞬时阶段初始冲击最大马赫数,  $M_0 = \alpha \left( \frac{Q}{R_0^3 c^2 \rho_0} \right)^{1/5} + 1$ ;  $R_0$  是此瞬间的初

始半径. 本文使用修正后的 Taylor-sedov 波前传播方程, 并且考虑环境的反压作用, 得到的冲击波传播时间与马赫数之间的关系为 [20]

$$t = \left( \frac{2}{5c} \right)^{\frac{5}{3}} \left( \frac{Q}{\alpha \rho_0} \right)^{\frac{1}{3}} M^{-\frac{5}{3}} (1 + \beta M^{-2}), \quad (3)$$

$$\beta = w(N+1)(N+2)/[N(2+3N)], \quad (4)$$

其中  $\rho_0$  是等离子体密度可取 1.3;  $w$  是气体常数, 空气环境下取 2; 冲击波为球面波,  $N$  取 3. 在忽略能量损失的前提下, 冲击波的传输压强可以表示为 [6]

$$P = \frac{2}{\gamma+1} \rho_0 U^2 \left( 1 - \frac{\gamma-1}{2\gamma} M^{-2} \right), \quad (5)$$

其中  $\gamma$  为空气比热容, 取  $4/3$ . 考虑不在同脉冲的情况下, 由 (1)–(5) 式可得到冲击波波前传输压强和波前传输半径的关系, 如图 6 所示.

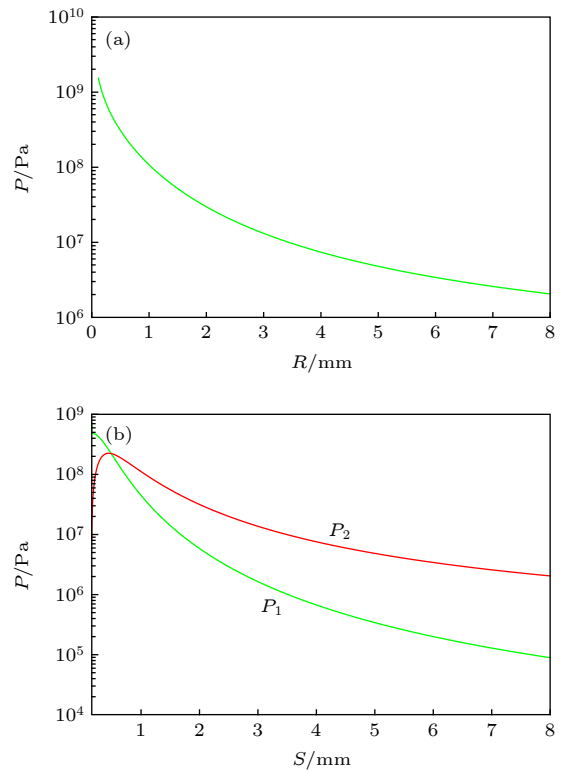


图 6 冲击波的传播 (a) 冲击波波前压强随传播半径的变化; (b)  $P_1$  为法向压强,  $P_2$  为切向压强

Fig. 6. Propagation of shock wave: (a) Changes in shock wavefront pressure with transmission radius; (b)  $P_1$  is the normal pressure,  $P_2$  is the tangential pressure.

从图 6(a) 可知, 在冲击波的传播过程中, 冲击波波前压强随着波前半径的不断增大而迅速减小, 从图上也可以看出冲击波传播范围在一个有限的区域内, 这样会限制颗粒的去除范围. 微纳颗粒的

去除主要是基于冲击波在平行于基底表面的切向分压强, 如图 6(b) 中的  $P_2$  曲线, 切向分压强随着水平半径的增大先增大后减小, 当切向压强加载到颗粒上时, 如果满足颗粒的去除阈值, 颗粒得到去除. 垂直于基底表面的法向压强, 主要是造成颗粒破碎的分力, 如图 6(b) 中的  $P_1$  曲线, 该分力随着半径的增大逐渐减小. 当 Al 纳米颗粒的承受压强达到 0.3 GPa 时 [21–23], 颗粒会发生破碎. 但是在样品制备过程中由于纳米颗粒之间范德瓦耳斯力强烈作用, 会出现纳米颗粒团聚现象, 导致 Si 基板上的 Al 颗粒尺寸不再是单一的尺寸, 而是存在各种不同的尺寸颗粒, 颗粒尺寸越小, 越不容易破碎, 因为颗粒粒径减小会导致颗粒与基底接触区域内单位面积上的范德瓦耳斯力增大, 而颗粒单位面积上的冲击波压力却没有变化, 这样当冲击波压力作用到基板上的 Al 颗粒时, 不同大小的颗粒在达到

抗压阈值后, 会同时发生破碎, 因而可以在样品表面发现残留的细碎小颗粒.

下面进行基于有限元分析法颗粒破碎模型分析. 在有限元分析中, 模型中假设 Al 纳米颗粒为球形, 放置于 Si 片基底上. Al 颗粒和 Si 基底的相关参数如表 1 所列 [24,25].

基底 Si 大小设置为  $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ , 并设置 Si 片底面和侧面为无反射边界. 将激光等离子冲击波转换为压强加载到颗粒的顶部表面, 得到颗粒内随时间变化的内应力分布, 从而分析不同粒径的颗粒的损伤破碎特性.

图 7 为冲击波作用到颗粒上时, 颗粒内部的内应力传播图. 从图 7 可以看出, 当冲击波作用到颗粒表面后会向颗粒四周以及底部扩散, 并且在材料的顶部、底部和中心出现了应力集中现象. 当冲击波传到颗粒的底部, 由于颗粒底部与基底的接触面

表 1 Al 颗粒和 Si 基底的相关参数

Table 1. Related parameters of Al particles and silicon substrate.

参数	导热系数/ $\text{pW} \cdot \mu\text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	密度/ $\text{kg} \cdot \mu\text{m}^{-3}$	比热容/ $\text{pJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	泊松比	弹性模量/MPa	热膨胀系数
铝	$237 \times 10^6$	$2700 \times 10^{-18}$	$880 \times 10^{12}$	0.330	$70 \times 10^3$	$23.21 \times 10^{-6}$
Si	$150 \times 10^6$	$2328 \times 10^{-18}$	$618 \times 10^{12}$	0.278	$190 \times 10^3$	$0.50 \times 10^{-6}$

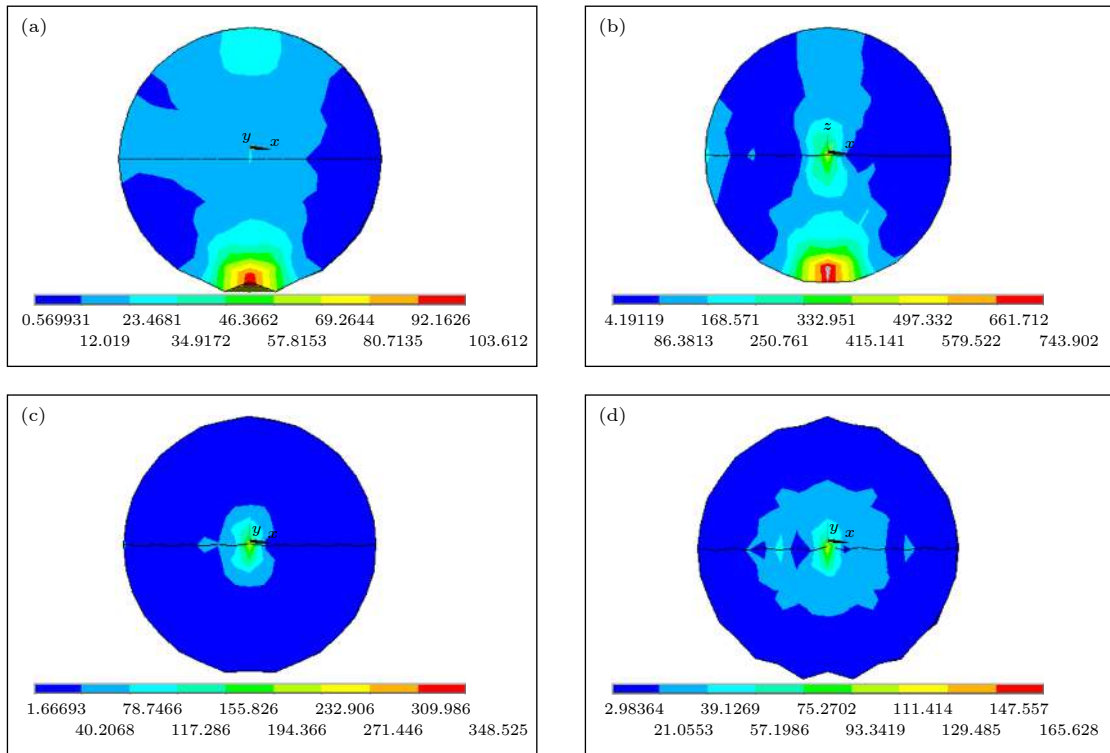


图 7 有限元分析-不同时间颗粒内应力分布图 (a) 103 MPa; (b) 743 MPa; (c) 348 MPa; (d) 165 MPa

Fig. 7. Finite element analysis-stress distribution in the particles at different times: (a) 103 MPa; (b) 743 MPa; (c) 348 MPa; (d) 165 MPa.

极小, 使得颗粒底部出现非常严重的应力集中现象. 随着时间的变化, 颗粒中某些部位的应力集中会超过颗粒的抗压强度 (纳米颗粒抗压强度 0.3 GPa), 从而使颗粒发生破碎, 使得大颗粒破碎成一些小颗粒, 因而增加了去除的难度, 与前面的冲击波的理论 and 实验现象中发现的 Al 微纳米颗粒破碎相符合.

### 3.2 热效应分析

冲击波传输温度是衡量冲击波传输特性的重要参量, 其波阵面温度的表达式可以记为<sup>[6]</sup>

$$T = P/\rho_1 R_G, \quad (6)$$

$$\rho_1/\rho_0 = (\gamma + 1) / (\gamma - 1 + 2M^{-2}), \quad (7)$$

其中  $R_G$  气体的普适常量. 把 (5) 式和 (7) 式代入 (6) 式, 可以得到

$$T = \frac{2U^2 \left[ 1 - \frac{\gamma - 1}{2\gamma} M^{-2} \right] \left[ \frac{\gamma - 1 + 2M^{-2}}{\gamma + 1} \right]}{(\gamma + 1)^2} R_G. \quad (8)$$

冲击波到达基板后, 与颗粒相互作用, 这一过程中温度的高低将影响颗粒的状态. 图 8 显示了冲击波波阵面温度随传播半径的变换规律.

纳米级的 Al 颗粒熔点在 900 K 左右<sup>[26,27]</sup>, 微米级的 Al 颗粒熔点在 1200—1500 K 左右, Si 基底的熔点在 1570 K 左右. 由图 8 可知, 波阵面的初始温度高达  $10^5$  K, 之后温度迅速降低, 并在传播距离达到约 3 mm 时, 冲击波温度下降到 Al 纳米颗粒的熔点 (1000 K) 附近, 因此在样品表面可以发现熔化颗粒, 而 Si 基底并无损坏. 将冲击波传播到颗粒上时的温度 1000 K 加载到颗粒的表面, 下面进行基于有限元分析法颗粒破碎模型分析.

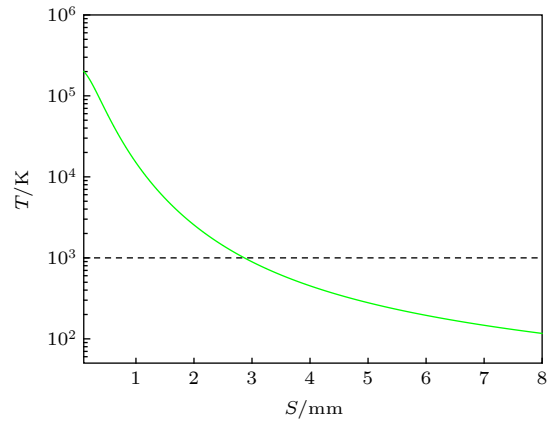


图 8 冲击波温度随波前传播半径的变化

Fig. 8. Changes in shock wave temperature with wavefront propagation radius.

图 9 为冲击波的热传播到颗粒中的过程. 冲击波的热作用到颗粒后, 从颗粒顶部逐渐向下传播, 颗粒的温度逐渐升高. 由于作用时间短, 当冲击波的热传播到基板后, 纳米颗粒与基板在很短的时间内会达到热平衡, 处于相同的温度状态, 由此可以看出, 温度对颗粒造成地损伤影响较小, 可以忽略. 虽然温度逐渐达到平衡, 但平衡的高温足以使实验样品表面的 Al 微纳米颗粒发生相变. 在图 9 中, 红色部分代表已经发生相变或者正在发生相变的部分. 这与前面的实验现象中发现 Al 微纳米颗粒相变符合较好. 可知, 对冲击波力和热的传输模拟, 不仅可以得到冲击波的压强以及温度的传播规律, 为颗粒破碎和相变提供理论基础, 也为有限元模拟提供相应数据, 如加载到颗粒上的压强和加载到颗粒上的温度.

当等离子体冲击波作用到样品表面时, 冲击波的压强以及高温会使样品表面颗粒以不同方式得

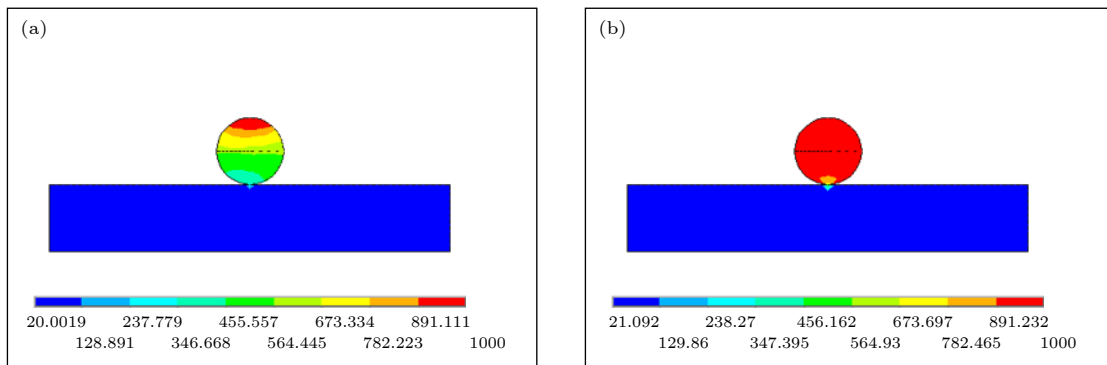


图 9 有限元分析-颗粒相变图

Fig. 9. Finite element analysis-particle melting diagram.

到去除,同时,当冲击波的压强和温度同时到达样品表面时,颗粒会发生一系列物态变化,而Si基底不会出现任何损坏(从温度来说,加载到颗粒上的温度为1000 K, Si基底的熔点在1570 K左右,从力来说,颗粒在高压冲击波作用下,内应力(有限元模拟得到的最高内应力870 MPa)远远大于硅基底,因此在相同条件下, Si基底未出现损坏,这也与实验结果相符合). 冲击波的高压会导致颗粒熔点的变化,压力越大则熔点越低,甚至颗粒可以在高压下直接发生相变,或者高温下会使样品表面的颗粒相变,从而样品表面颗粒发生相变,同时,冲击波的压强作用到颗粒还会使颗粒发生破碎,在高温作用下,颗粒抗压强度会减小,这会导致颗粒在高温作用下更加容易破碎,从而加速颗粒减小,而颗粒的减小、小颗粒数量的增加以及颗粒的相变会使得颗粒去除过程难度增大,变得更为复杂.

## 4 结 论

通过多脉冲激光等离子体去除Si基底上的微纳米颗粒研究发现:随着激光脉冲数增加时,颗粒会发生破碎和相变而导致颗粒尺寸变小且数量增多,这会增加颗粒去除的难度,降低去除效率. 基于等离子体的热力学特性研究,并结合有限元方法对颗粒的内应力和温度变化特性进行模拟发现:冲击波作用下,颗粒的内应力会集中与颗粒垂直与基底表面的法向轴心处,这会导致颗粒发生中心破碎;冲击波的热作用会使颗粒中的温度达到熔点,导致颗粒发生相变. 实验与理论研究表明,激光等离子体去除微纳米颗粒属于热力学共同作用的结果,需要两个方面进行综合考虑.

## 参考文献

[1] Varghese I, Peri M D M, Dunbar T, Maynard B, Thomas D

- A, Cetinkaya C 2008 *J. Adhes. Sci. Technol.* **22** 651
- [2] Zhang P, Bian B M, Li Z H 2007 *Appl. Surf. Sci.* **254** 1444
- [3] Cetinkaya C, Vanderwood R, Rowell M 2002 *J. Adhes. Sci. Technol.* **16** 1201
- [4] Han J H, Luo L, Zhang Y B, Hu R F, Feng G Y 2016 *Chin. Phys. B* **25** 095204
- [5] Lee J M, Watkins K G 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 6496
- [6] Lim H, Jang D, Kim D, Lee J W, Lee J M 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 054903
- [7] Vanderwood R, Cetinkaya C 2003 *J. Adhes. Sci. Technol.* **17** 129
- [8] Li X X, Jia T Q, Feng D H, Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2154 (in Chinese) [李晓溪, 贾天卿, 冯东海, 徐至展 2004 物理学报 **53** 2154]
- [9] Hooper T, Cetinkaya C 2003 *J. Adhes. Sci. Technol.* **17** 763
- [10] Lee S H, Kang Y J, Park J G, Busnaina A A, Lee J M, Kim T H, Zhang G, Eschbach F, Ramamoorthy A 2005 *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** 5560
- [11] Yu B H, Dai N L, Wang Y, Li Y H, Ji L L, Zheng Q G, Lu P X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5821 (in Chinese) [余本海, 戴能利, 王英, 李玉华, 季玲玲, 郑启光, 陆培祥 2007 物理学报 **56** 5821]
- [12] Kim T H, Cho H, Busnaina A, Park J G, Kim D 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 063104
- [13] Jang D, Oh J H, Lee J M, Kim D 2009 *J. Appl. Phys.* **106** 014913
- [14] Oh B, Lee J W, Lee J M, Kim D 2008 *J. Adhes. Sci. Technol.* **22** 635
- [15] de Giacomo A, Hermann J 2017 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** 183002
- [16] Su M G, Cao S Q, Sun D X, Min Q, Dong C Z 2016 *Phys. Plasmas* **23** 033302
- [17] Gu Q Q, Feng G Y, Zhou G R, Han J H, Luo J, Men J L, Jiang Y 2018 *Appl. Surf. Sci.* **457** 604
- [18] Thompson P A, Carofano G C, Kim Y G 1986 *J. Fluid Mech.* **166** 57
- [19] Chen X, Bian B M, Shen Z H, Lu J, Ni X W 2003 *Microwave Opt. Technol. Lett.* **38** 75
- [20] Harith M A, Palleschi V, Salvetti A, Singh D P, Tropiano G, Vaselli M 1989 *Opt. Commun.* **71** 76
- [21] Kumar S S S, Raghu T 2014 *Mater. Des.* **57** 114
- [22] Liu Z F, Zhang Z H, Lu J F, Korznikov A V, Korznikova E, Wang F C 2014 *Mater. Des.* **64** 625
- [23] Akbarpour M R, Torknik F S, Manafi S A 2017 *J. Mater. Eng. Perform.* **26** 4902
- [24] Pleasants S, Kane D M 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 8862
- [25] Zheng Y W, Luk'yanchuk B S, Lu Y F, Song W D, Mai Z H 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 2135
- [26] Levitas V I, Pantoya M L, Chauhan G, Rivero I 2009 *J. Phys. Chem. C* **113** 14088
- [27] Sun J, Simon S L 2007 *Thermochim. Acta* **463** 32



# Thermodynamics of laser plasma removal of micro and nano-particles<sup>\*</sup>

Luo Ju    Feng Guo-Ying    Han Jing-Hua<sup>†</sup>    Shen Xiong  
Zhang Li-Jun    Ding Kun-Yan

(*College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, China*)

( Received 20 December 2019; revised manuscript received 1 February 2020 )

## Abstract

Micro-impurity pollution is always one of the key factors affecting the quality and service life of precision devices. Micro-nano impurity particles are difficult to remove by traditional cleaning methods (ultrasonic cleaning, etc.) and low removal efficiency by laser cleaning methods (dry laser cleaning, etc.). The laser plasma shock wave has high pressure and high temperature characteristics, which can remove nano-scaled impurity particles, and has great potential applications. In this work, we mainly study the thermodynamic effect of the laser plasma in the process of removing micro- and nano-particles. In this work, the Al particles on the Si substrate are removed by laser plasma shock wave, and the transformation of the particle state is discussed through the changes of the experimental sample morphology after different pulse effects. The experimental results show as follows With the increase of the pulse number, the micro- and nano-particle residues gradually decrease. At the same time, on the surface of the sample after these particles are removed, it can be found that large particles break up into small particles, and some of the particles will change into smooth spheres when their temperatures reach the melting point. These phenomena are the result of the interaction of the thermodynamic effect of the plasma. In order to study the transformation process of particle state, based on the plasma shock wave propagation theory, the evolution law of pressure characteristic and temperature characteristic of shock wave are obtained. From the evolution law, it can be seen that with the increase of shock wave radius, the pressure and temperature gradually decrease. When the shock wave propagates to the surface of a sample, it can reach the compression threshold and correspondingly the surface temperature arrives at melting temperature of particles, which are consistent with the experimental results. By using the finite element simulation method, the pressure and temperature of laser plasma shock wave acting on particles are studied. The stress distribution and temperature distribution in particles varying with time are obtained. The analysis results are consistent with the experimental results, and therefore the thermodynamic mechanism of plasma on particles is obtained.

**Keywords:** plasma shock wave, particle fragmentation, particle phase transition, thermodynamic analysis

**PACS:** 42.25.Bs, 52.77.Bn, 42.70.Hj

**DOI:** [10.7498/aps.69.20191933](https://doi.org/10.7498/aps.69.20191933)

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11574221) and the Key Research and Development Program of Sichuan Province, China (Grant No. 2019YFG0263).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [hjh\\_scu@163.com](mailto:hjh_scu@163.com)