

散射作用下粒径对激光烧结的影响

贺云龙, 李凌

(上海理工大学 能源与动力工程学院, 上海 200093)

摘要: 采用二维双温度模型对激光烧结过程中的相变传热特性进行了模拟研究, 重点讨论了颗粒粒径对烧结过程的影响, 在此过程中考虑了散射效应的作用。通过将界面能量平衡方程、成核动力学的界面追踪法相耦合来确定固-液界面的位置。结果表明: 当激光垂直照射金颗粒时, 熔化现象主要发生在颗粒的两极且底部熔化开始时间早, 熔化体积也比较小。颗粒粒径的变化主要影响表面光强分布与传热尺寸两个方面, 在激光照射阶段由于散射效应, 粒径增加会使颗粒底部光强变强, 底部温度升高; 在激光照射结束以后, 粒径越大, 单位光照表面下的传热体积也越大, 这导致大粒径颗粒的温度、熔化程度较低, 底部温度下降速度更快。

关键词: 激光光学; 散射效应; 二维双温度模型; 固-液界面; 烧结

中图分类号: O 436 **文献标志码:** A

Influence of Particle Size on the Laser Sintering Under Scattering Effects

HE Yunlong, LI Ling

(School of Energy and Power Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: The phase change heat transfer of a gold particle irradiated by ultra-fast laser was studied by the two-dimensional dual temperature model. The position of the solid-liquid interface was determined by coupledly using the interface energy balance equation and the interface tracking method in nucleation dynamics. In addition, the effects of particle size on the sintering process were studied. The results show that when the laser irradiates the gold particle vertically, the melting phenomenon occurs mainly in the poles of the particle. The bottom of the particle melts earlier than the top and the melting volume is smaller. The difference of the particle size mainly affects the light intensity distribution and the heat transfer size. In the laser irradiation stage, due to the scattering effect, the particle size becomes larger and the bottom light intensity becomes bigger, which raises the bottom temperature. When the laser irradiation has finished, the larger particle size leads to a larger heat-transfer volume, which leads to a decrease in the particle temperature and the melting rate.

Keywords: laser optics; scattering effect; two-dimensional dual temperature model; solid-liquid

收稿日期: 2018-04-09

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51476102)

第一作者: 贺云龙(1988-), 男, 硕士研究生。研究方向: 激光与物质相互作用。E-mail: hylmydc@163.com

通信作者: 李凌(1976-), 女, 教授。研究方向: 微尺度传热。E-mail: liling@usst.edu.cn

interface; sintering

选择性激光烧结技术是一种先进的快速制造技术, 有对材料适应性广、精度高、工艺简单等诸多优点。该技术通过激光逐层地照射烧结选区内的粉末材料从而形成所需要的部件^[1], 但烧结过程中由于激光能量密度高、烧结时间短的特点, 成型工件的质量对激光及材料的参数非常敏感。为了提高工件质量, 对烧结过程中颗粒传热现象的研究就显得尤为重要。很多学者对激光和金属颗粒之间相互作用的过程进行了研究, 包括对不同传热机理的对比^[2-3]、激光参数对烧结过程的影响^[4]以及不同材料的烧结特性^[5]。然而上述的研究都是把激光光源假设为沿颗粒表面均匀分布, 而将激光与金属的相互作用简化为一维问题, 这样的处理方法简化了计算。但由于超短激光照射金颗粒的过程中存在着散射效应, 这导致颗粒表面光强的不均匀分布, 因此一维模型无法反映真实的烧结情况。Zhou 等^[6]通过追踪光子的运动轨

迹来统计落在颗粒表面各区域的光子数目, 获得了颗粒表面光强不均匀分布函数。Zhong 等^[7]在此基础上研究了颗粒间的散射对表面光强分布造成的影响。本文主要采用二维双温度模型, 并引入由于散射作用所引起的颗粒表面光强不均匀分布结果, 结合界面追踪法模拟了在散射作用下激光照射金颗粒的相变传热情况, 并研究了在激光烧结过程中颗粒粒径这一重要参数对烧结的影响。

1 物理模型

图1给出了物理模型, 一束高斯脉冲激光垂直照射到金颗粒表面, 颗粒半径为 r_0 , 初始温度为 T_0 。将颗粒分成 n 个部分, θ 为圆心角。激光束的波长为 $0.7 \mu\text{m}$, 宽度为 L , 且 $L=4r_0$, 关于圆心对称, 其脉冲宽度为 t_p , 能量密度为 J 。由于对称性, 论文选取的计算区域为半个颗粒。

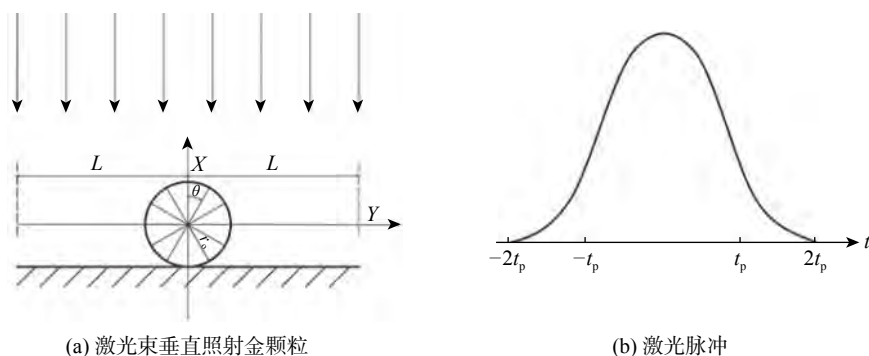


图1 物理模型

Fig.1 Physical model

在球坐标系下描述电子和晶格能量传递的经典双温度模型如下^[8]:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 k_e \frac{\partial T_e}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \cdot \frac{\partial}{\partial \theta} \left(k_e \sin \theta \frac{\partial T_e}{\partial \theta} \right) - G(T_e - T_l) + S\beta(\theta) \quad (1)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 k_l \frac{\partial T_l}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(k_l \sin \theta \frac{\partial T_l}{\partial \theta} \right) + G(T_e - T_l) \quad (2)$$

式中: T 为温度; t 为时间; r 为深度; C 为单位体积热容; k 为热导率; 下标 e 和 l 分别表示电子和晶格; G 为电子和晶格的耦合系数; S 为热源; θ

为圆心角; $\beta(\theta)$ 为颗粒表面光强分布函数。

上述模型中的参数可从文献^[9]中获得。 S 的表达式为^[10]

$$S = 0.94 \frac{(1-R)J}{t_p(\delta + \delta_b)[1 - e^{-r_0/(\delta + \delta_b)}]} \cdot \exp \left[-\frac{r_0 - r}{\delta + \delta_b} - 2.77 \left(\frac{t}{t_p} \right)^2 \right] \quad (3)$$

式中: δ 代表光子穿透深度; δ_b 代表电子碰撞深度; R 为金箔表面的反射率。颗粒表面分布函数 $\beta(\theta)$ 根据 Zhou 的计算方法^[5], 通过模拟光子和颗粒的相互作用过程来获得。

在激光波长为 500 nm , 颗粒半径为 650 nm 的情况下, 获得颗粒表面光强分布如图2所示。在

$\theta=0\sim90^\circ$ 的范围内, 光强分布函数符合兰贝特定律, β 随 θ 的增加而减小, 并在 $\theta=90^\circ$ 附近达到极小值。在 $\theta=123.75^\circ$ 时, 出现了一个小的峰值, 这主要是因为受到基板反射光子的影响。 $\theta=180^\circ$ 时, 吸收光强达到最大, 这是由于颗粒的散射光强较大的区域都集中在颗粒的底部, 颗粒底部吸收光强变大, 甚至超过了 $\theta=0^\circ$ 处的光强值。

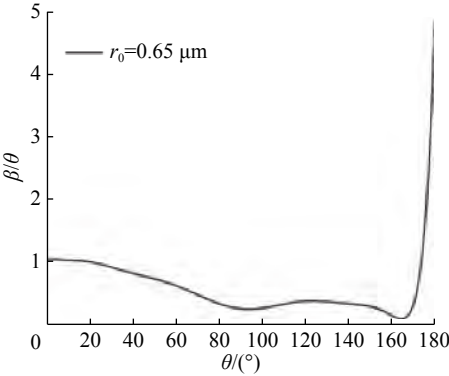


图2 金颗粒表面光强分布

Fig.2 Surface light intensity distribution function of gold particles

计算初始条件为

$$T_e(\theta, r, -2t_p) = T_l(\theta, r, -2t_p) = T_0 \tag{4}$$

$$\frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial T_l}{\partial t} = 0 \tag{5}$$

忽略从颗粒表面出去的激光辐射损失, 边界条件为绝热边界条件:

$$\left. \frac{\partial T_e}{\partial r} \right|_{r=r_0} = \left. \frac{\partial T_l}{\partial r} \right|_{r=r_0} = 0 \tag{6}$$

$$l = \left[\left(l^3 - \frac{1}{\rho_l h_m} \left\{ \frac{1}{r_p^2 (\Delta r)_p} \left[\frac{r_n^2 k_{l,n} (T_{l,n}^{n+1} - T_{l,l}^{n+1})}{(\delta r)_n - (0.5 - f_p)(\Delta r)_p} - \frac{r_s^2 k_{l,s} (T_{l,l}^{n+1} - T_{l,s}^{n+1})}{(\delta r)_s + (0.5 - f_p)(\Delta r)_p} \right] \right. \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{1}{r_p^2 \sin(\theta_p)(\Delta \theta)_p} \left(\sin(\theta_e) k_{l,e}^n \frac{T_{l,e}^n - T_{l,p}^n}{(\delta \theta)_e} - \sin(\theta_w) k_{l,w}^n \frac{T_{l,p}^n - T_{l,w}^n}{(\delta \theta)_w} \right) \right. \right. \\ \left. \left. + G_p (T_{e,p} - T_{l,p}) - C_{l,p}^n \frac{T_{l,p}^{n+1} - T_{l,p}^n}{\Delta t} \right\} \Delta t (r_n^3 - r_s^3) \right)^{\frac{1}{3}} \tag{12}$$

式中: T 为温度; 上标 $n+1$ 表示当前时间步; n 表示上一时间步; 下标 P, N, S, E 和 W 为网格节点位置; n, s, e, w 为网格界面位置; l 为熔化界面。

网格节点划分如图(3)和图(4)所示。对于超短脉冲激光加工金颗粒, 固-液界面的移动速度由成核动力学方程控制^[11], 可以表示为

$$u_s = V_0 \left[1 - \exp \left(- \frac{h_m}{R_g T_m} \frac{T_{l,l} - T_m}{T_{l,l}} \right) \right] \tag{13}$$

式中: $T_{l,l}$ 为熔化界面温度; T_m 为熔点温度; R_g

$$\left. \frac{\partial T_e}{\partial \theta} \right|_{\theta=0} = \left. \frac{\partial T_e}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_{\max}} = \left. \frac{\partial T_l}{\partial \theta} \right|_{\theta=0} = \left. \frac{\partial T_l}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_{\max}} = 0 \tag{7}$$

2 熔化界面追踪法

烧结中熔化过程采用基于界面的能量平衡方程、成核动力学方程和液化界面追踪的方法来计算。将固-液界面位置所在的控制容积的能量方程写成焓的形式:

$$\frac{\partial H_l}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 k_l \frac{\partial T_l}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(k_l \sin \theta \frac{\partial T_l}{\partial \theta} \right) + G(T_e - T_l) \tag{8}$$

式中焓的计算公式为

$$H_l = \int_0^{T_{l,l}} C_{l,s}(T_l) dT_l + f \rho_l h_m \tag{9}$$

式中: $C_{l,s}$ 为固态晶格热容; h_m 为熔化潜热; $T_{l,l}$ 为熔化界面温度; ρ_l 为晶格密度; f 为固-液界面所在网格内液相的体积分数, 与速度有如下关系, 即

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\frac{r_n^3 - (l - u_s \Delta t)^3}{r_n^3 - r_s^3} - \frac{r_n^3 - l^3}{r_n^3 - r_s^3}}{\Delta t} \tag{10}$$

式中: r_n, r_s 分别为发生熔化网格前后界面的位置; u_s 为界面移动速度; l 为液相界面在控制体中的位置, 计算公式为

$$l = l_0 - u_s \Delta t \tag{11}$$

式中: l_0 为上一时间步熔化界面位置。

将式(9)带入式(8)并进行离散化, 再与式(10)联立可以得到固-液界面的速度方程为

为金属气体常数; V_0 为熔化极限速度。

在计算过程中, 当最外层晶格温度首次达到熔点时, 认为熔化过程开始, 之后按照以下过程对金颗粒的熔化和凝固过程进行计算:

a. 假设界面温度为控制体节点温度, 然后按式(12)确定界面移动速度, 并计算固-液界面位置和液相体积分数;

b. 将式(12)与式(13)计算出的界面速度进行比较, 如果前者的计算结果大于后者, 则减小界

面温度的预设值，反之则增加界面温度的预设值；

c. 经过步骤 b，对预设固-液界面温度修正后重新对电子和晶格温度进行计算；

d. 重复步骤 a 至步骤 c，直到用式 (12) 和式 (13) 计算出来的界面移动速度差达到设定的差值，这一时间层上的电子、晶格温度以及界面温度、界面速度才能满足计算精度。

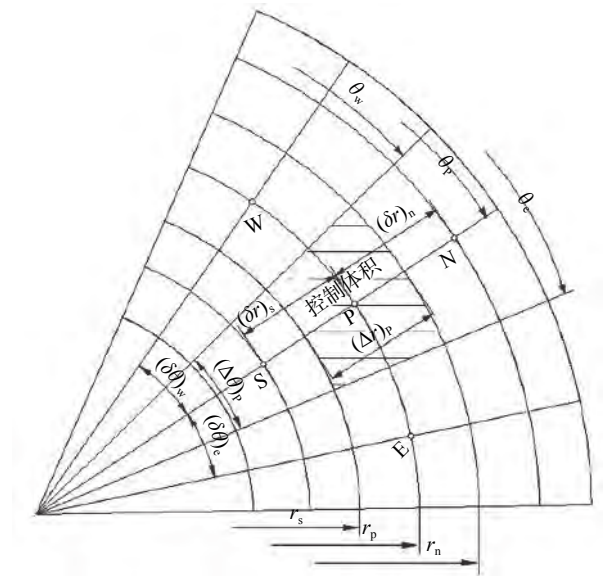


图 3 网格划分图
Fig.3 Grid map

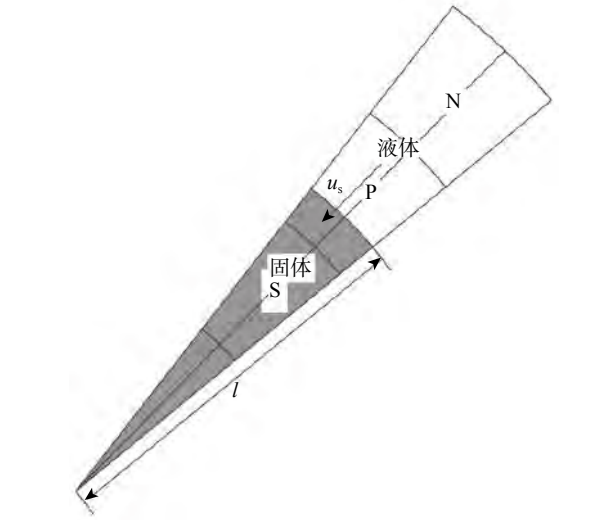


图 4 固液界面附近网格
Fig.4 Interface grid

3 结果与讨论

3.1 算法的验证

单脉冲激光照射下金颗粒的温度场采用了交

替方向隐式的有限体积法来计算，网格数为 502×502。金颗粒的初始温度为 300 K，模拟时间从 $-2t_p$ 开始， $t_p=15\text{ ps}$ ，时间步长为 1 ps。为了对算法进行验证，对每个网格在单位步长时间内焓的变化进行求和，获得颗粒总的焓变量 ΔH ，并与该时间步长下激光输入能量 ΔS 进行比较，结果如图 5 所示（小图为画方框部分的局部放大）。激光从 $t=-30\text{ ps}$ 时开始照射，在 $t=0\text{ ps}$ 时达到脉冲峰值，再到 $t=30\text{ ps}$ 时照射结束； ΔH 也随之先增大后减小，在激光照射结束以后， $\Delta H=0$ 保持不变， ΔH 与 ΔS 基本吻合，能量保持守恒。

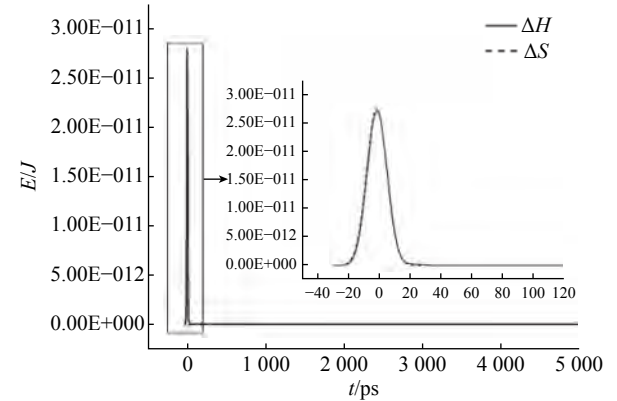


图 5 金颗粒单位时间步长内焓的变化量和激光输入的能量
Fig.5 Enthalpy change and the energy of laser input

3.2 单脉冲激光照射金颗粒的熔化过程

图 6 是一束 $t_p=15\text{ ps}$ ， $J=0.5\text{ J/cm}^2$ 的激光照射粒径为 650 nm 的金颗粒在不同时刻的温度场。从图 6 可以看出，随着激光照射的开始，颗粒的两极出现了明显的高温区域，与顶部相比较，颗粒的底部高温区域的温度更高，但范围较小。这是由于散射效应增大了底部光强，使其获得更多的激光能量。文献[12]在激光照射金颗粒的试验中发现颗粒底部出现一个高温区域，将基板熔化出一个坑洞，这与本文模拟得到的颗粒底部出现局部高温现象基本一致。之后随着热量不断地向内部低温区域传导，颗粒底部的高温区域逐渐消失，整个颗粒的温度场趋于均匀。但上半部分温度整体水平依旧高于下半部分，这是因为上半部分颗粒整体光强水平比较高，获得更多的激光能量。在图 6(e) 颗粒的上半部分，可以看到一条高温曲线，这是由于熔化结束以后，发生再凝固现象放热，使界面温度升高。颗粒的相变情况如图 7 所示，其中粉色部分是发生熔化的区域，颗粒底部在 $t=2\text{ ps}$ 时最先开始熔化，此后向周围区域扩

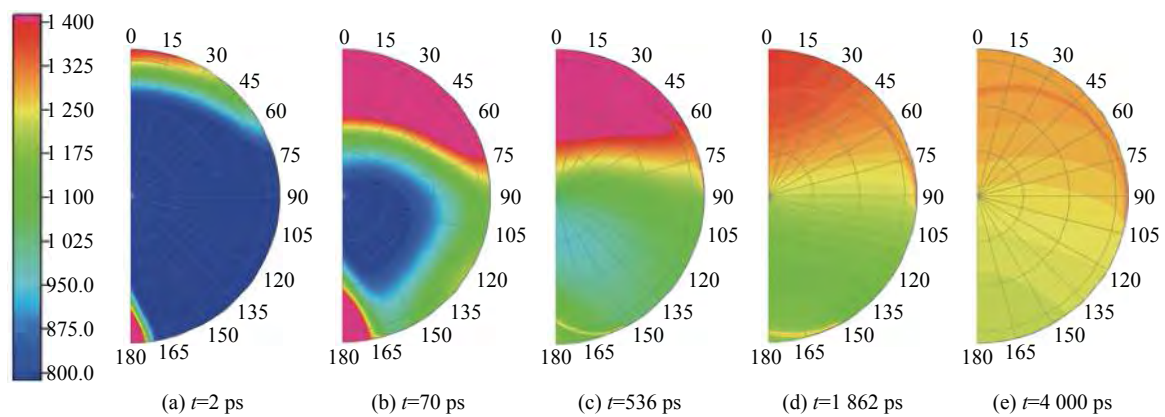


图 6 不同时刻颗粒晶格的温度分布

Fig.6 Lattice temperatures at different time

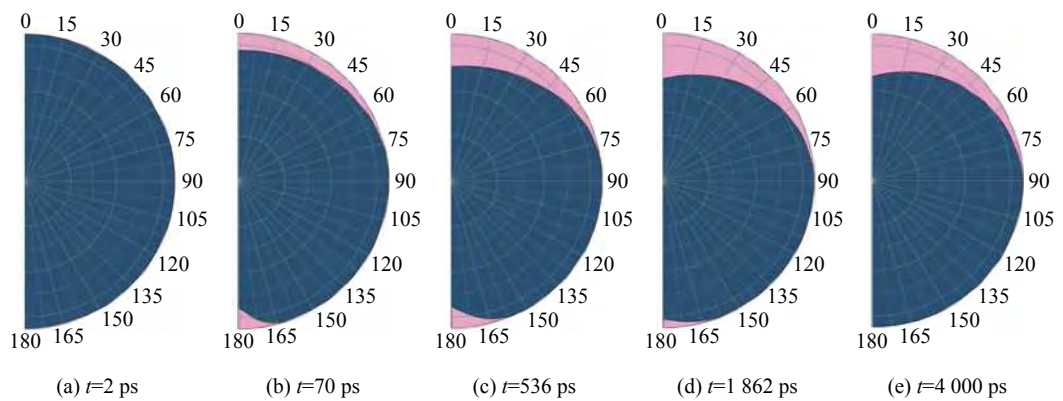


图 7 不同时刻颗粒的熔化情况

Fig.7 Particle melting at different time

散，并在 $t=536\text{ ps}$ 时熔化体积达到最大之后开始缓慢凝固。颗粒顶部在 $t=4\text{ ps}$ 时开始熔化，并于 $t=1\,862\text{ ps}$ 时熔化体积达到最大。颗粒熔化过程主要发生在颗粒的两极，且底部熔化体积小于顶部。

3.3 颗粒粒径对烧结过程的影响

颗粒粒径的改变会影响颗粒表面的光强分布，在计算颗粒表面光强分布的过程中有两个非常重要的参数即无量纲粒径 α 与反照率 a 。无量纲粒径的表达式为 $\alpha=m_1\pi d/\lambda$ ，其中 λ 是入射光在真空中的波长， d 为球形颗粒的直径， m_1 为颗粒周围分散介质的折射率。当颗粒在空气中时 $m_1\approx 1$ ，无量纲粒径参数 $\alpha=\pi d/\lambda$ 。光子被金颗粒吸收或反射是通过反照率 a 来判断的，而颗粒的反照率 a 与无量纲粒径 α 的关系如图 8 所示^[5]。可以看出无量纲粒径在 $0\sim 1$ 范围内，反照率有一个明显的增加，之后增幅逐渐变小。

图 9 是在激光波长为 500 nm 的情况下，通过模拟计算获得的不同粒径金颗粒表面光强分布曲线。可以看出，圆心角在 $-120^\circ\sim 120^\circ$ 的范围内颗

粒表面的光强分布基本没有受到粒径变化带来的影响，但在底部附近，颗粒表面的光强分布有一个明显的增强，这是粒径变化导致反照率变大，散射效应被不断加强的结果。

一束 $t_p=15\text{ ps}$ ， $J=0.5\text{ J/cm}^2$ 的激光分别照射不同粒径的金颗粒，图 10 是在 $t=30\text{ ps}$ ，即激光照射刚结束时，颗粒的温度场分布。从图中可以看出，颗粒底部的温度随着粒径的增加而不断升

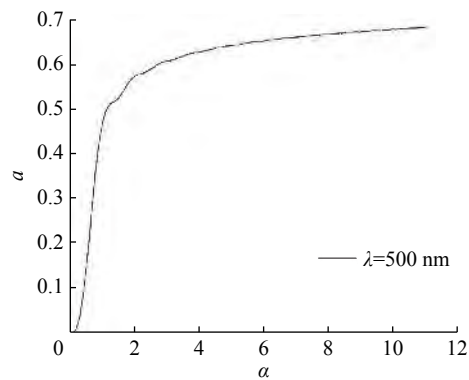


图 8 反照率随无量纲粒径的变化

Fig.8 Albedo vs. dimensionless radius

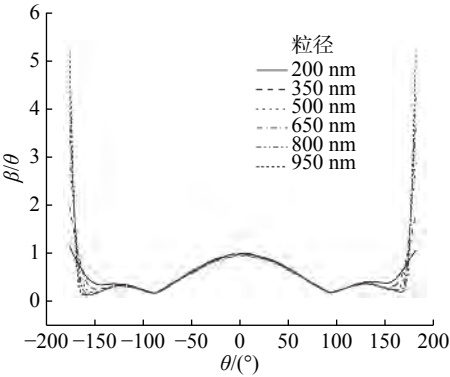


图 9 不同粒径颗粒表面的光强分布 ($\lambda=500\text{ nm}$)
Fig. 9 Distribution of $\beta(\theta)$ at different radii ($\lambda=500\text{ nm}$)

高, 当粒径从 200 nm 增加到 800 nm, 颗粒底部温度从 3 801 K 下降到 5 580 K, 这是由于粒径的增加会加强散射效应的作用, 使颗粒底部光强提高, 从而颗粒底部获得更多的激光能量。而颗粒顶部与颗粒球心附近的温度随着粒径的增加而不断降低, 当粒径从 200 nm 增加到 800 nm, 颗粒顶部温度从 3 793.5 K 下降到 2 558 K, 而球心温度则

从 1 230 K 下降到 860 K。球体的体积比表面积为半径的 $\frac{1}{3}$, 随着粒径变大, 单位光照面积下的传热体积增大, 导致温度降低。

图 11 为 $t=2\ 000\text{ ps}$ 时颗粒的温度场分布。此时粒径为 200 nm 的颗粒已经完全熔化, 颗粒的最高温度为 2 371 K, 最低温度为 2 369 K, 整体温度趋于均匀。当粒径为 800 nm, 颗粒的熔化体积占比为 10.1%, 颗粒最高温度为 1 331 K, 最低温度为 1 000 K。在颗粒的下半部分, 底部温度偏高, 这是因为相变界面到达底部, 凝固过程放热使温度升高。在激光照射结束一段时间以后, 颗粒的温度场趋于均匀, 颗粒整体的温度、熔化程度随粒径增加而降低。

图 12 是不同粒径颗粒底部表面温度随时间变化的曲线。可以看出随着粒径变大, 颗粒底部表面温度达到的峰值不断提高, 之后下降的速度也越来越快。这是因为随着粒径变大, 散射效应增强, 颗粒底部获得更多的能量, 温度也相应提高。但由于散射效应加强的区域较小, 而其周围

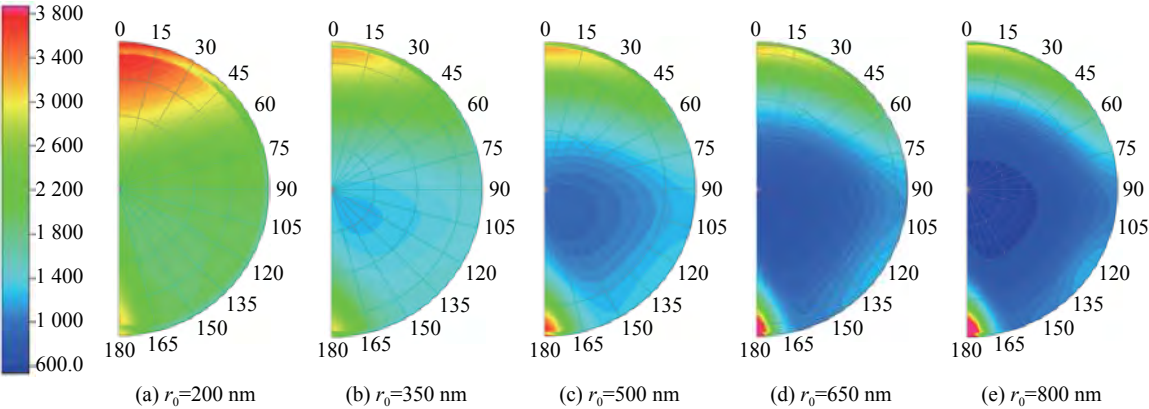


图 10 $t=30\text{ ps}$ 时颗粒的温度场
Fig.10 Temperature field of particles at $t=30\text{ ps}$

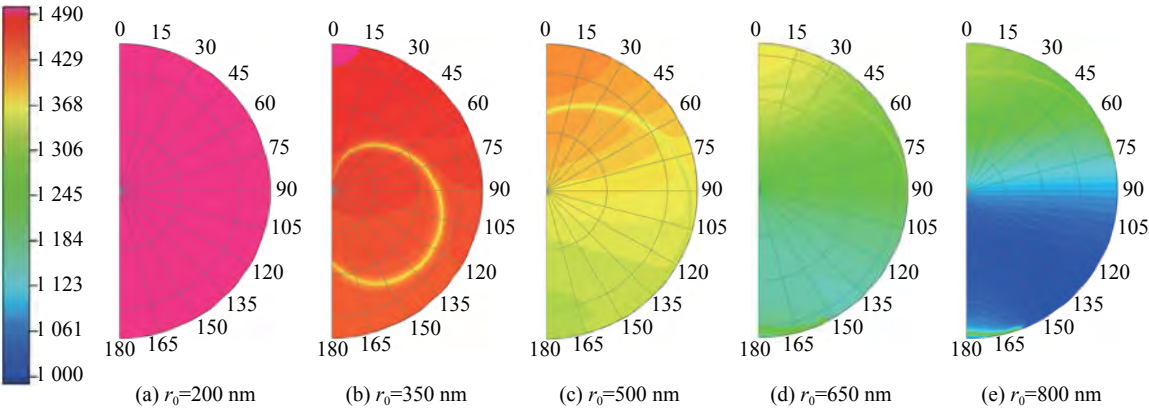


图 11 $t=2\ 000\text{ ps}$ 时颗粒的温度场
Fig.11 Temperature field of particles at $t=2\ 000\text{ ps}$

光强较弱的低温区域体积随半径变大，底部热量向四周低温区域扩散，温度也随之降低，使熔化不能近一步加深。

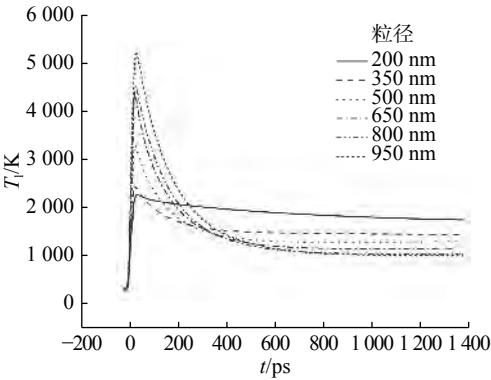


图 12 $\theta=180^\circ$ 时表面温度随时间的变化
Fig.12 Surface temperature at $\theta=180^\circ$ vs. time

4 结 论

本文将激光照射金颗粒的双温度模型应用到二维双温度模型，并引入了由于散射效应引起的颗粒表面光强不均匀分布的影响，结合基于界面能量平衡方程与成核动力学相耦合的界面追踪法，模拟了在散射作用下激光照射金颗粒的熔化情况，并研究了粒径对烧结过程的影响。研究表明：由于散射效应，当激光垂直照射金颗粒时，熔化现象主要发生在颗粒的两极，且底部熔化开始时间早，熔化体积较小。在激光照射阶段，粒径的增加会增强散射效应的作用，使颗粒底部光强提高，底部温度也随之升高。在激光照射结束以后，由于粒径变大会增加单位光照表面积下传热的体积，所以颗粒的粒径越大整体的温度水平越低，颗粒熔化程度也越低，颗粒底部的温度也下降得越快。

参考文献：

[1] PELTOLA S M, MELCHELS F P W, GRIJPM A D W, et al. A review of rapid prototyping techniques for tissue engineering purposes[J]. Annals of Medicine, 2008, 40(4):

268–280.
[2] QIU T Q, TIEN C L. Heat transfer mechanisms during short-pulse laser heating of metals[J]. Journal of Heat Transfer, 1993, 115(4): 835–841.
[3] SHIOMI M, YOSHIDOME A, ABE F, et al. Finite element analysis of melting and solidifying processes in laser rapid prototyping of metallic powders[J]. International Journal of Machine Tools and Manufacture, 1999, 39(2): 237–252.
[4] LI L, ZHAO S Q. Thermal ablation of thin gold films irradiated by ultrashort laser pulses[J]. Applied Physics A, 2016, 122(4): 437.
[5] CHEN J K, BERAUN J E. Numerical study of ultrashort laser pulse interactions with metal films[J]. Numerical Heat Transfer, Part A: Applications, 2001, 40(1): 1–20.
[6] ZHOU L, LI L, ZHANG Y W, et al. Source distribution based on Mie’s scattering theory for heat conduction in nanoparticle subject to ultrashort laser irradiation[J]. Numerical Heat Transfer, Part A: Applications, 2014, 66(6): 605–621.
[7] ZHONG J B, LI L. Scattering effect of particles irradiated by ultrashort laser[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2015, 27(8): 27089004.
[8] ANISIMOV S I, KAPELIOVICH B L, PEREL’MAN T L. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses[J]. Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics, 1974, 39: 375–377.
[9] ZHANG Y W, CHEN J K. An interfacial tracking method for ultrashort pulse laser melting and resolidification of a thin metal film[J]. Journal of Heat Transfer, 2008, 130(6): 062401.
[10] HOHLFELD J, WELLERSHOFF S S, GÜDDE J, et al. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals[J]. Chemical Physics, 2000, 251(1/2/3): 237–258.
[11] KUO L S, QIU T. Microscale energy transfer during picosecond laser melting of metal films[M]. New York: American Society of Mechanical Engineers, 1996.
[12] NEDYALKOV N, IMAMOVA S, ATANASOV P, et al. Gold nanoparticles as nanoheaters and nanolenses in the processing of different substrate surfaces[J]. Journal of Physics, 2010, 223(1): 012035.

(编辑：丁红艺)