

高斯分布激光散焦距离对激光转印 Cu 薄膜形貌影响及机理分析

刘 威¹ 窦广彬^{1,2*} 王春青¹ 田艳红¹ 叶交托¹

(¹ 哈尔滨工业大学先进焊接与连接国家重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150001)
² 英国帝国理工大学电子与电气工程系, 伦敦 SW7 2BT)

摘要 激光诱发前向转印(LIFT)技术作为微加工的一种手段,具有制备微小结构的能力,目前已经成为微细加工领域的研究热点。通过改变高斯分布的激光聚焦位置,进行了 Cu 薄膜在石英玻璃表面的转印实验,并对转印沉积薄膜进行了光学显微镜、扫描电子显微镜(SEM)和能量弥散 X 射线(EDX)等分析,探讨了激光散焦距离与沉积薄膜的尺寸、形貌以及厚度均匀性的关系,并在此基础上研究了转印薄膜形貌发生变化的机理。研究表明,随着激光光斑离焦距离的增大,转印图形的尺寸先增大后变小,直至消失。转印 Cu 薄膜的形态从环形或火山形,转变为圆形,并且圆形薄膜的边缘存在大量微小的 Cu 颗粒。薄膜的转印形式也由开始的液态转印向固态转印演变。

关键词 薄膜;形貌及界面;激光诱发前向转印;微结构制造

中图分类号 TG456.9 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201340.0507001

Effect of Defocus Distance on Morphology of Gaussian Distributed Laser Induced Forward Transfer Cu Film and Mechanism Analysis

Liu Wei¹ Dou Guangbin^{1,2} Wang Chunqing¹ Tian Yanhong¹ Ye Jiaotuo¹

¹ State Key Laboratory of Welding and Joining, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001, China

² Department of Electrical and Electronic Engineering, Imperial College London, London SW7 2BT, United Kingdom

Abstract As a method of micro fabrication, laser induced forward transfer (LIFT) can be used to make microstructures. Presently, it has become a popular issue on microfabrication process. In this study, a Cu thin film is transferred from one quartz substrate to another quartz substrate by regulating the defocus distance of Gaussian distributed laser beam. The transferred Cu thin film is processed by optical microscope, scanning electron microscope (SEM), and energy dispersive X-ray (EDX) analyzing. Relationship between defocus distance of the laser beam and size, morphology and uniformity of transferred Cu film is discussed. Moreover, mechanism of the morphology transition is analyzed based on the results. The results indicate that with the increase of defocus distance, the size of transferred Cu patterns increase firstly, then decrease, and disappear at last. Morphology of the transferred Cu patterns transforms from crater-shape to plane with many tiny Cu particles at the edge of the patterns. In addition, the transfer form of the thin film changes from liquid transfer to solid transfer.

Key words thin films; morphology and interface; laser induced forward transfer; microstructural fabrication

OCIS codes 160.3900; 310.6845; 310.1860

1 引 言

激光被广泛地应用于薄膜和微纳颗粒制备领域^[1~5]。激光诱发前向转印(LIFT)是基于激光的

诱导作用实现微量物质转移的技术,最先由美国学者 Bohandy 等^[6,7]提出。LIFT 过程分为三个阶段:激光穿过透明基板,照射在透明基板的薄膜上(透明

收稿日期: 2012-11-29; 收到修改稿日期: 2013-01-15

基金项目: 国家自然科学基金(51005058)和先进焊接与连接国家重点实验室开放课题资助课题。

作者简介: 刘 威(1981—),男,博士,讲师,主要从事激光微互连技术和先进封装技术等方面的研究。

E-mail: w_liu@hit.edu.cn

* 通信联系人。E-mail: g.dou@imperial.ac.uk

基板即为源基板,源基板的另一面预先制备了一层薄膜作为源薄膜),激光与薄膜材料发生相互作用;源薄膜由于激光的作用从源基板上剥离,转移到与源基板很近的目标基板上;发生转移的源薄膜在目标基板上发生沉积。作为微细加工的一种手段,LIFT 技术具备制作微小结构的能力,能实现金属^[8,9]、有机物^[10]、半导体^[11]和生物材料^[12,13]等多种材料的转移和图形制作。利用这种方法可以实现微电极制作^[14]、发光二极管(LED)封装^[15~18]和凸点制作及微机电系统(MEMS)组装^[19~21]。

激光转印的机理也受到了极大的关注。Bohandy 等^[6,22~24]分别使用了有限差分 and 有限元的方法来计算激光照射下薄膜材料上的温度分布,并发现界面处的薄膜在激光照射下吸热后气化,气压达到一定值时推动薄膜从源基板上剥离,沉积在目标基板上,从而完成转印过程。

目前,欧美及日本的一些科学家将该技术成功地应用于电路互连、器件修补、微传感器制作和表面光栅制作等领域,但对于高斯分布激光转印 Cu 薄膜图形的特殊形态演变、薄膜转印状态的分析则鲜有报道。本文通过改变高斯分布激光的聚焦位置,进行了 Cu 薄膜在石英玻璃表面的转印实验,并对转印沉积薄膜进行了光学显微镜、扫描电子显微镜(SEM)和能量弥散 X 射线(EDX)分析,探讨了激光散焦距离与沉积薄膜的尺寸、形貌以及厚度均匀性的关系,并在此基础上研究了转印薄膜形貌发生变化的机理。

2 实验材料及方法

转印实验所采用的目标基板为石英圆片,厚度为 0.5 mm,直径为 125 mm。源基板为同样规格的石英圆片,采用离子溅射的方法在圆片上先后沉积 20 nm 的 Cr 层和 250 nm 的 Cu 层,其中 Cr 为过渡层。

激光转印实验采用的是大功率脉冲 YAG 固体激光器。激光波长为 1064 nm。聚焦光斑直径为 1.0 mm。激光输出波形、单脉冲功率值、脉冲宽度、频率值均可调,其中单脉冲功率范围为 495~9000 W,脉宽范围为 0.3~20 ms,频率范围为 0.1~600 Hz。激光头在 X、Y、Z 三个方向的位置可以实现精确自动控制。

激光转印 Cu 薄膜的实现方式如图 1 所示。源基板与目标基板接触放置,通过改变激光焦斑相对于源基板与 Cr/Cu 薄膜界面的相对位置 Z 来研究转印薄膜的形貌及机理,Z 值的变化范围是 1~

8 mm。实验中所使用的激光脉冲功率是 5000 W,激光加热时间是 0.3 ms。

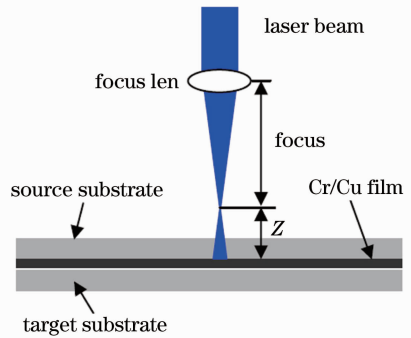


图 1 改变 Z 值实现激光转印 Cu 薄膜示意图
Fig. 1 Diagram of laser transferred Cu film realized by changing Z value

将完成激光转印实验的样品进行 SEM 分析,由于对 SEM 样品大小有要求,因此要对目标基板圆片进行切割,这里采用的切割设备是刃内圆陶瓷切割机。SEM 分析实验样品切成 20 mm×20 mm 的小片。

对转印所得的薄膜形貌的初步观察是通过 Olympus 公司的 SZX-12 光学显微镜来实现,对转印薄膜的进一步观察采用的 SEM 为场发射型,型号为美国 FEI 公司的 Quanta 200F,分辨率为 2 nm。由于配备了能谱仪,该设备还可以对转印图形进行微区成分分析。测试转印薄膜的厚度使用的是 Taylor Hobson 公司生产的 Form Talysurf PGI 1240 表面粗糙度轮廓仪。垂直分辨率可达 0.8 nm,探头半径为 2 mm,测量长度可达 120 mm。

3 结果与讨论

图 2 是不同散焦程度下转印所得到的薄膜的尺寸变化情况。从图中可以发现,随着激光束散焦程

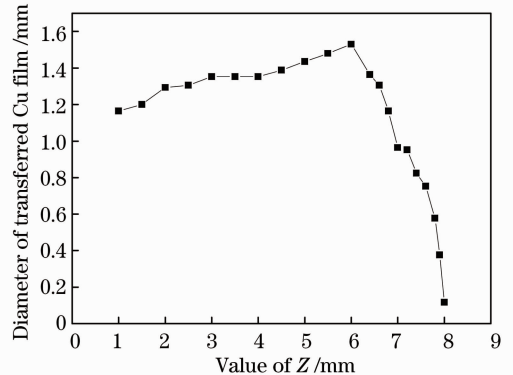


图 2 不同 Z 值情况下转印图形的直径
Fig. 2 Diameter of transferred Cu pattern in the condition of different Z values

度的增加,转印 Cu 薄膜的尺寸先是变大,随后变小,直至转印不再发生。转印图形在 Z 值为 1 mm 时的初始尺寸是 1.16 mm,当 Z 值增加到 6 mm 时,图形的直径变为 1.53 mm。离焦距离 Z 在 1~6 mm 内的转印图形尺寸增长较慢,当 Z 值增大到 6.4 mm 时,转印图形尺寸减小到 1.36 mm,当 Z 值增大到 8 mm 时,转印薄膜的尺寸减小到 0.12 mm,而且并不能保证每次转印过程都能够成功。离焦尺寸 Z 值在 6~8 内,转印薄膜尺寸急剧减小。

图 3 是不同 Z 值条件下得到转印图形的外观变化情况,可以看出在 Z=3.5 mm 之前的转印图形中部都是存在发亮的区域,转印图形的边缘区域存在晕圈,当 Z≥4 mm 时得到的转印图形中部发亮区域消失,并且转印图形的形状及尺寸会有一些差异,这可能是由于高斯分布激光光斑内部光强不均匀且焦点易漂移造成的。对两类典型转印图形的轮廓进行了检测,选取的测试图形分别在 Z=2 mm 和 Z=6 mm 的工艺条件下制得,结果如图 4 所示。Z=2 mm 时,转印图形中心出现了 30 μm 左右的凹陷区域。图形的边缘处出现了环形的突起,要高于目标基板平面,其形貌类似于火山。当 Z=6 mm 时,图形的中部整体上高于目标基板的平面,转印的图形呈近薄膜状。以上结果表明,高斯激光的离焦尺寸对转印图形的形貌及尺寸均有十分明显的影响。

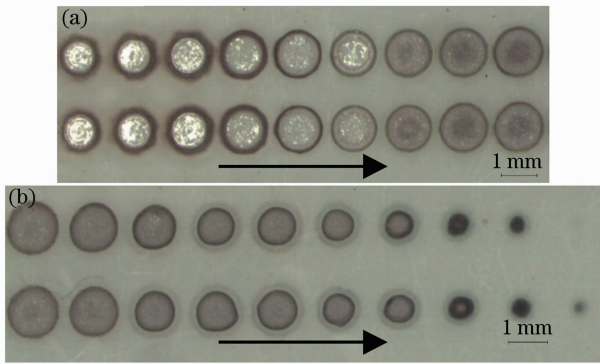


图 3 不同 Z 值情况下转印图形的外观。(a) Z=1、1.5、2、2.5、3、3.5、4、4.5、5 mm; (b) Z=6.4、6.6、6.8、7.0、7.2、7.4、7.6、7.8、7.9、8.0 mm (从左至右)

Fig. 3 Appearance of transferred Cu pattern in condition of different Z values. (a) Z=1, 1.5, 2, 2.5, 3, 3.5, 4, 4.5, 5 mm; (b) Z=6.4, 6.6, 6.8, 7.0, 7.2, 7.4, 7.6, 7.8, 7.9, 8.0 mm (from left to right)

转印到目标基板处 Cu 薄膜的图形尺寸随激光散焦程度变化的规律可以从对激光入射能量分布特征的分析中得到。由于使用的激光束能量分布是不均匀的,为轴对称的高斯分布,所以只有激光光斑中

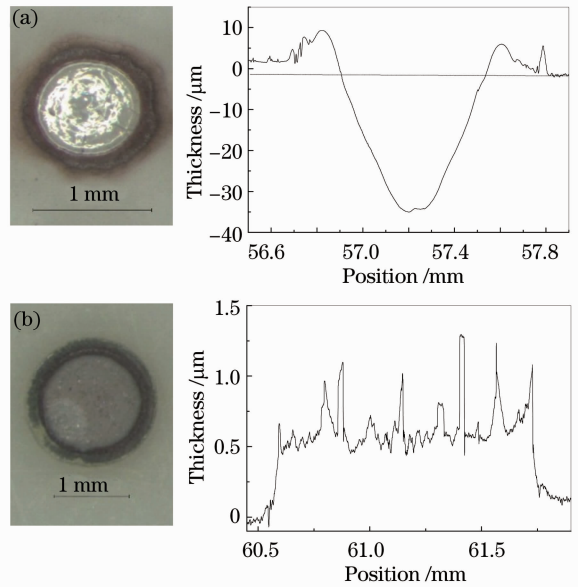


图 4 两类典型图形的形貌和厚度。(a) Z=2 mm; (b) Z=6 mm

Fig. 4 Morphologies and thicknesses of two typical transferred Cu pattern. (a) Z=2 mm; (b) Z=6 mm

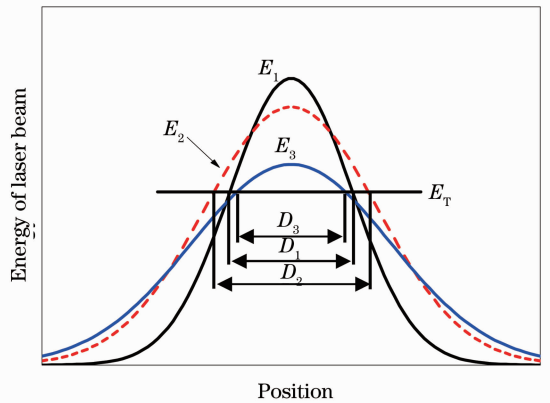


图 5 高斯激光光斑的能量分布变化情况
Fig. 5 Variation of energy distribution for Gaussian laser beam

心区域的能量才能达到 Cu 薄膜转印的激光转印能量阈值 E_T 。随着激光散焦程度的增加,激光能量的峰值则逐渐降低,照射到源基板 Cu 薄膜表面达到或超过阈值能量的光斑尺寸会不断增大。反映在图 5 中,激光能量分布曲线由 E_1 变为 E_2 ,虽然激光的峰值能量降低,但超过图形转印能量阈值区域则会变大,可以发生转印区域的直径由 D_1 则增大到 D_2 ;随后发生转印区域薄膜的直径变小,则是因为当光束离焦到一定程度时,激光入射能量也将进一步分散,使得能达到阈值能量的照射区域面积减小,最终导致发生转印的薄膜尺寸也随之减小;表现在图 5 中的情况是:激光入射能量分布的曲线由 E_2 变

为 E_3 时,可以发生转印的区域直径由 D_2 减小为 D_3 。当中心区域的激光能量峰值小于转印阈值能量时,转印便不会发生。

转印薄膜的形貌发生变化同样要归因于离焦程度不同所导致的激光能量分布差异。由上述分析可知,激光能量是高斯分布的,激光的离焦处理不但改变了激光工作平面处的光斑大小,而且改变了激光的能量分布状态。在离焦值 Z 较小时,激光束的能量相对集中,且光斑中心区域的能量远高于转印 Cu 薄膜的阈值。所以在这种情况下,Cu 薄膜将大部分是液滴的形态,并以较大的动能从源基板向目标基板喷射,与此同时,激光光斑中心的高能量密度激光束还会导致玻璃基板熔化或烧蚀,在热和机械力的作用下会形成中心凹陷比较严重的火山形转印图形(见图 4)。而随着离焦值 Z 的增加,在工作平面处,激光能量分布将趋向于均匀,即激光光斑中心区域的能量密度峰值将会降低,这样会使待转印薄膜的熔化状态、飞行动能均发生变化,而且还会避免高能量密度的激光束对目标基板的烧蚀。

图 6 是离焦值 $Z=6$ mm 时的转印薄膜二次电子图像(SEI)和背散射信号图像(BSE)的 SEM 照

片。该结果表明采用离焦手段,可以得到以薄膜形态转印的 Cu 膜,转印图形的中心区域及边缘都有 Cu 覆盖,且一致性较好。此外,目标基板也没有发生烧蚀现象。离焦后转印薄膜的状态是固态转印,还是液滴转印,从图 6 中无法进行判断。为此,对转印图形的中心区域和边缘区域进行了放大。图 7(a)为离焦情况下转印所得厚度分布比较均匀的沉积 Cu 薄膜中心区域的 SEM 显微图像,膜层呈现出鳞片状结构。每个鳞片形貌比较平整,尺寸在 $100\ \mu\text{m}$ 左右。进一步放大可以发现,鳞片表面有细小的颗粒存在,颗粒的尺寸为几微米,经 EDX 成分分析知颗粒的主要成分是 Cu。鳞片与鳞片之间有明显的裂纹存在。图案的边缘区域有类似的形貌。另外,从图 7(b)可以发现,转印 Cu 薄膜的中心区域与边缘区域的形貌并不完全一致,与中心区域相比,颗粒状物出现得更加密集。根据薄膜的形貌可以判断,此时发生了固态转印,即 Cr/Cu 薄膜与源基板界面附近处的薄膜发生了气化,形成的气化物推动其余薄膜以固体的形式从源基板上剥离,飞向了目标基板,并在其表面完成了转印。由于固体薄膜在转印的过程中有较大的动能,因而转印到目标基板

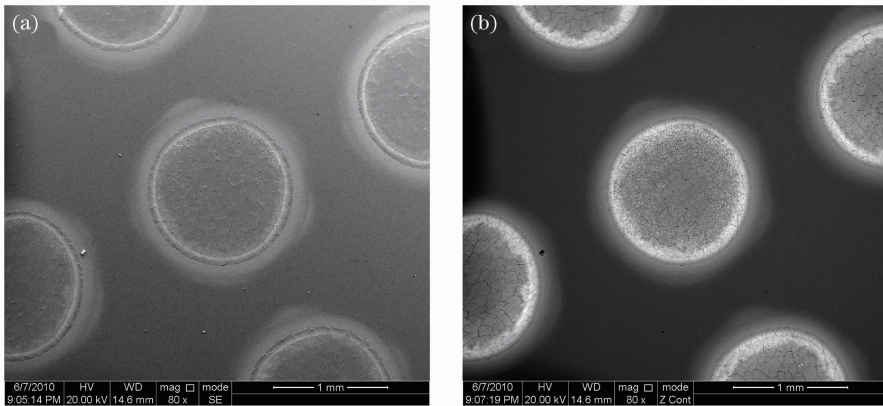


图 6 当 $Z=6$ mm 时转印 Cu 薄膜的 SEM 照片。(a) SEI; (b) BSE

Fig. 6 SEM photos of transferred Cu patterns when $Z=6$ mm. (a) SEI; (b) BSE

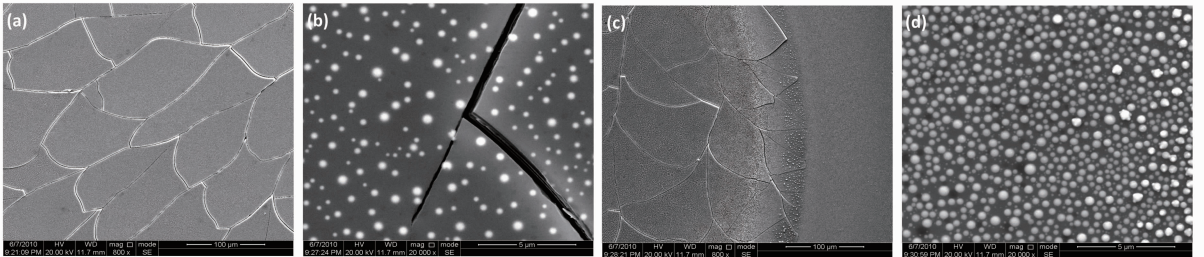


图 7 当 $Z=6$ mm 时转印 Cu 薄膜局部形貌。(a)中心区域;(b)高倍中心区域;(c)边缘区域;(d)高倍边缘区域

Fig. 7 Local morphology of transferred Cu pattern when $Z=6$ mm. (a) Central part; (b) high magnification of central part; (c) edge part; (d) high magnification of edge part

时,与基板发生碰撞,薄膜破碎成了鳞片状的结构。中心处与边缘处的颗粒状物则是气化物随后在 Cu 薄膜表面固化的产物。由于中心处气化物的动能较大,冲击到目标基板后便向四周飞溅,大部分气化物在转印图形区域的边缘处冷却、凝固下来,于是造成转印图形中心处颗粒状物质较少,而边缘处颗粒物质较多的分布形式。

4 结 论

使用高斯分布激光,通过改变聚焦位置实现了 Cu 薄膜的 LIFT。转印图形的尺寸随激光束离焦程度增加先增大,然后迅速变小,至不能发生转印。转印图形的形貌由环形或火山形转变为圆形薄膜形态。出现上述变化的原因是:高斯分布激光束的峰值能量位于中心区域,离焦过程中,激光束峰值能量下降,高于 Cu 薄膜转印的能量阈值面积先增大后降低,导致转印 Cu 薄膜图形面积发生相应的变化。与此同时,激光束峰值能量下降也使 Cu 薄膜转印的状态从开始的液滴喷射形成环状转印图形,向气化物推动固态圆形 Cu 薄膜向目标基板转印的演变。

参 考 文 献

- Liu Yunyan, Cheng Chuanfu, Song Hongsheng *et al.*. Morphology analysis of ZnO:Ga thin films deposited by pulsed laser deposition [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(1): 0131003
刘云燕,程传福,宋洪胜等. 激光溅射沉积制备的 ZnO:Ga 薄膜表面形貌分析[J]. *光学学报*, 2011, **31**(1): 0131003
- Song Jing, Geng Yongyou. Preparation of polyvinyl alcohol (PVA)/silver (Ag) nanocomposite film applied in laser direct writing of blue ray (405 nm) [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, **32**(9): 0931003
宋晶,耿永友. 用于蓝光(405 nm)激光直写的聚乙烯醇/银纳米复合材料薄膜的制备[J]. *光学学报*, 2012, **32**(9): 0931003
- Wang Junqiao, Zhang Xinzhen, Sun Liping *et al.*. Laser-induced deposition of silver nanoparticles films and microstructures onto glass substrates [J]. *Chinese J. Lasers*, 2011, **38**(1): 0107001
王俊俏,张心正,孙立萍等. 激光诱导银纳米颗粒薄膜和微结构[J]. *中国激光*, 2011, **38**(1): 0107001
- Luo Le, Wang Yi, Chu Yaqiong *et al.*. Influence of the nitrogen pressure on diamond-like carbon film deposited by pulse [J]. *Chinese J. Lasers*, 2011, **38**(9): 0907001
罗乐,汪毅,储雅琼等. 氮气压强对脉冲激光沉积类金刚石薄膜和红外光学特性的影响[J]. *中国激光*, 2011, **38**(9): 0907001
- Zheng Jinxiang, Zheng Xiaohua, Shen Tao *et al.*. Microstructure and triobological behavior of CN_x films deposited by iterative pulsed laser deposition [J]. *Chinese J. Lasers*, 2012, **39**(6): 0607001
郑晋翔,郑晓华,沈涛等. 递进式脉冲激光沉积 CN_x 薄膜的组织结构与摩擦学特性[J]. *中国激光*, 2012, **39**(6): 0607001
- J. Bohandy, B. F. Kim, F. J. Adrian. Metal deposition from a supported metal film using an excimer laser [J]. *J. Appl.*

- Phys.*, 1986, **60**(4): 1538~1539
- F. J. Adrian, J. Bohandy, B. F. Kim *et al.*. A study of the mechanism of metal deposition by the laser-induced forward transfer process [J]. *J. Vac. Sci. Technol.*, 1987, **5**(5): 1490~1494
- S. Bera, A. J. Sabbah, J. M. Yarbrough *et al.*. Optimization study of the femtosecond laser-induced forward-transfer process with thin aluminum films [J]. *Appl. Opt.*, 2007, **46**(21): 4650~4659
- Yang Li, Wang Chingyue, Ni Xiaochang *et al.*. Aluminum film microdeposition at 775 nm by femtosecond laser-induced forward transfer [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2007, **5**(5): 308~310
- A. Palla-Papavlu, V. Dinca, C. Luculescu *et al.*. Laser induced forward transfer of soft materials [J]. *J. Opt.*, 2010, **12**(12): 124014
- J. Shaw-Stewart, B. Chu, T. Lippert *et al.*. Improved laser-induced forward transfer of organic semiconductor thin films by reducing the environmental pressure and controlling the substrate-substrate gap width [J]. *Appl. Phys. A-Mater.*, 2011, **105**(3): 713~722
- B. Hopp, T. Smausz, G. Szabo *et al.*. Femtosecond laser printing of living cells using absorbing film-assisted laser-induced forward transfer [J]. *Opt. Eng.*, 2012, **51**(1): 014302
- P. Serra, M. Colina, J. M. Fernandez-pradas *et al.*. Preparation of functional DNA microarrays through laser-induced forward transfer [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **85**(9): 1639~1641
- C. Germain, L. Charron, L. Lilge *et al.*. Electrodes for microfluidic devices produced by laser induced forward transfer [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2007, **253**(19): 8328~8333
- R. Fardel, M. Nagel, F. Nuesch *et al.*. Fabrication of organic light-emitting diode pixels by laser-assisted forward transfer [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **91**(6): 061103
- H. Y. Kuo, S. J. Wang, P. R. Wang *et al.*. A Sn-based metal substrate technology for the fabrication of vertical-structured GaN-based light-emitting diodes [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **92**(2): 021105
- K. Bao, X. N. Kang, B. Zhang *et al.*. Improvement of light extraction from GaN-based thin-film light-emitting diodes by patterning undoped GaN using modified laser lift-off [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **92**(14): 141104
- J. Shaw-Stewart, T. Lippert, M. Nagel *et al.*. Sequential printing by laser-induced forward transfer to fabricate a polymer light-emitting diode pixel [J]. *ACS Appl. Mater. Inter.*, 2012, **4**(7): 3535~3541
- C. Wang, A. S. Holmes. Laser-assisted bumping for flip chip assembly [J]. *IEEE T. Electron. Pack.*, 2001, **24**(2): 109~114
- A. S. Holmes, S. M. Saidam. Sacrificial layer process with laser-driven release for batch assembly operations [J]. *J. Microelectromech. S.*, 1998, **7**(4): 416~422
- R. Guerre, U. Drechsler, D. Jubin *et al.*. Selective transfer technology for microdevice distribution [J]. *J. Microelectromech. S.*, 2008, **17**(1): 157~165
- R. J. Baseman, N. M. Froberg. Time-resolved transmission of thin gold films during laser blow-off [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **55**(18): 1841~1983
- R. J. Baseman, N. M. Froberg, J. C. Andreshak *et al.*. Minimum fluence for laser blow-off of thin gold films at 248 and 532 nm [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **56**(15): 1412~1414
- N. T. Kattamis, M. S. Brown, C. B. Arnold. Finite element analysis of blister formation in laser-induced forward transfer [J]. *J. Mater. Res.*, 2011, **26**(18): 2438~2449