

超光电子铜箔的微尺度激光冲击平坦化

赵恩兰^{1,2}, 王情情^{1,2*}, 杨海峰^{1,2}, 彭玉兴^{1,2}¹中国矿业大学机电工程学院, 江苏 徐州 221116;²江苏省矿山智能采掘装备协同创新中心, 江苏 徐州 221116

摘要 根据激光冲击的原理对超光电子铜箔进行了微尺度激光冲击平坦化(MLSF)处理。首先,通过 MLSF 实验研究脉冲能量和冲击次数等工艺参数对电子铜箔平坦化效果(表面粗糙度 S_a)的影响规律;然后,根据电子铜箔平坦化效果与工艺参数的对应规律,阐明电子铜箔的 MLSF 原理;最后,采用透射电子显微镜对 MLSF 处理前后的电子铜箔进行显微表征,揭示电子铜箔 MLSF 的表面变形机理。研究表明:当激光脉冲能量为 $100 \mu\text{J}$ 、冲击次数为 3 次时,电子铜箔的表面粗糙度(S_a)从 22.7 nm 降低到 5.0 nm ,降低了 78%;冲击波经吸收层和样品层后被放大,使得样品层(铜箔)与底板(玻璃)的表面形貌接近;金属箔内部的小塑性变形和下表面附近的大塑性变形是 MLSF 的表面变形机制。

关键词 激光技术; 激光冲击; 微尺度; 电子铜箔; 表面粗糙度; 表面变形机理

中图分类号 TN249

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1602002

1 引言

在电路板的制造过程中,电子铜箔是重要的基础材料,它起到电路和元器件互联互通的重要作用。同时,对于精细线路的电路板和高频高速用电路板而言,超光滑的电子铜箔是这类高端电路板制造过程中必不可少关键材料。传统的抛光方法,如电化学抛光、离子束清洗、化学机械抛光、超声波抛光等^[1-2],在超薄金属箔的高效抛光上存在一定的局限性。激光加工在材料表面处理领域具有广阔的应用前景^[3],激光抛光是降低零件表面粗糙度的一项新技术。Wang 等^[4]采用高频 CO_2 激光抛光方法制备了长周期光纤光栅。Temmler 等^[5]通过多步激光抛光在 H11 刀具表面获得了表面粗糙度 $R_a = 0.05 \mu\text{m}$ 的表面粗糙度,但加工材料在抛光过程中极易熔化,因此该方法不适合金属箔的表面抛光。

激光冲击强化与成形是利用短脉冲激光产生的超高压、高速冲击力实现材料高应变率塑性变形的制造技术。激光冲击喷丸(LSP)可以诱导材料表面产生晶粒细化、残余压应力等,从而提高材料表面的综合力学性能^[6-7]。2006年,美国普渡大学的 Cheng 等^[8]首次提出了激光冲击压印(LSI)技术,并应用此技术制造出了 $300 \mu\text{m}$ 宽的周期微结构。在激光冲击压印过程中,激光诱导的冲击波使金属箔发生塑性变形。Gao 等^[9]利用激光冲击压印技术在 $4 \mu\text{m}$ 厚铝箔上制造出

了 10 nm 宽的周期微结构,该微结构可应用在电子、等离子体传感等方面。江苏大学的沈宗宝课题组^[10-11]利用激光冲击喷丸技术在多种金属箔表面制造出了 $200 \sim 500 \mu\text{m}$ 宽的周期微结构,并验证了该技术在微电子系统精密零件制造上的可行性。

激光冲击技术具有使金属箔表面发生塑性变形的能力,因此具有实现电子铜箔表面抛光的潜力。研究人员发现通过优化工艺参数能够有效降低金属材料的表面粗糙度,如:Wang 等^[11]、Lu 等^[12]、Dai 等^[13]均发现通过改变搭接率可以提高材料的表面质量;Dai 等^[14]对 LY2 铝合金数控铣削表面进行激光冲击强化,结果发现强化后的表面粗糙度显著降低。但是,激光冲击强化难以控制工件的表面粗糙度,因此不适合用来对金属箔进行表面处理。此外,Gao 等^[9]在铝箔表面的微成形研究中发现,激光冲击压印可以有效降低铝箔的表面粗糙度,但加工后的铝箔表面存在起伏较大的三维微结构。杨海峰课题组^[15-16]采用激光冲击强化技术获得了无轮廓的铜箔,其表面粗糙度为 17.2 nm 。同时,他们还采用该方法对铝箔进行了抛光处理^[17],即:利用高能量脉冲激光产生的冲击波使铝箔与底板(K9 玻璃)发生撞击,从而复制底板的光滑表面,获得较小的粗糙度;但由于他们采用的是焦耳级的脉冲能量和毫米级的光斑,因此铝箔产生了较大的塑性变形,而且光斑过渡区的轮廓起伏较大。

为进一步提高现有电子铜箔的抛光效果,本课题

收稿日期: 2021-08-24; 修回日期: 2021-09-05; 录用日期: 2021-11-22

基金项目: 国家自然科学基金(52105494)、中央高校基本科研业务费专项资金(2020QN58)

通信作者: *wangqingqing@cumt.edu.cn

组采用微焦耳量级的脉冲激光对电子铜箔进行微尺度激光冲击平坦化(MLSF)处理。实验所用激光光斑尺寸与电子铜箔厚度相当,应力波以椭球波的形式向下传播,光斑内外冲击波产生的力效应没有明确的界限,从而大大减小了光斑搭接处铜箔表面的较大起伏。本文重点分析 MLSF 工艺参数,如脉冲能量和冲击次数,对抛光效果的影响,阐明 MLSF 电子铜箔表面平坦化的原理,并通过显微分析揭示 MLSF 铜箔表面的变形机理,为电子铜箔的抛光工艺优化提供理论指导。

2 实 验

MLSF 最为突出的特点是激光脉冲能量在微焦耳量级,光斑直径在微米量级,通过激光焦点的扫描

实现金属箔表面的平坦化。MLSF 实验装置由脉冲激光器、扩束与准直器、振镜系统和靶材组成,如图 1(a)所示。其中,激光的脉冲宽度、波长和重复频率分别为 10 ns、355 nm 和 1 kHz。准直后的激光束通过振镜进行扫描并聚焦于电子铜箔表面,焦点光斑直径为 20 μm 。靶材的组成和 MLSF 原理如图 1(b)所示。靶材从上到下依次为 2 mm 厚的 K9 玻璃(约束层)、20 μm 厚的铝箔(吸收层)、20 μm 厚的电子铜箔(加工试样)和 2 mm 厚的 K9 玻璃(底板)。激光诱导产生的冲击波的峰值压力远大于试样的动态屈服强度,因此,在冲击波和底板的共同作用下试样的下表面发生塑性变形,从而获得超低的表面粗糙度^[18]。

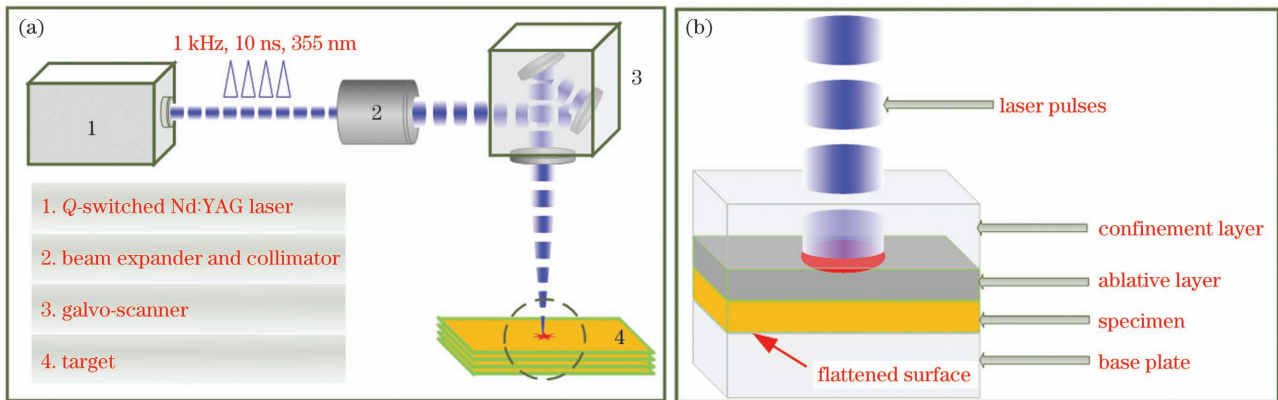


图 1 MLSF 实验装置和工作原理。(a)实验装置;(b)工作原理

Fig. 1 Schematic of microscale laser shock flattening (MLSF) experimental set-up and work principle. (a) MLSF experimental set-up; (b) work principle of MLSF

本文所用铜箔[如图 2(a)所示]的抗拉强度和密度分别为 295 MPa 和 8.9 g/cm³。实验前,先将铜箔在 723 K 的真空环境中退火 1 h,以消除铜箔中的原始缺陷,减小原始缺陷对 MLSF 铜箔微观塑性变形机理的影响。退火后铜箔的表面粗糙度 S_a 为 22.7 nm。铜箔下方底板的表面粗糙度要小,以保证铜箔在 MLSF 后的表面粗糙度均匀且足够小。同时,为了保证底板在冲击波

作用下不发生塑性变形和破裂,激光脉冲诱导冲击波的压力应低于底板的 Hugoniot 弹性极限。实验中所用激光的单脉冲能量为 100 μJ ,根据 Fabbro 冲击压力模型^[19],其对应的冲击波峰值压力(P_{max})约为 3.2 GPa。因此,选取 2 mm 厚的 K9 玻璃作为底板[如图 2(b)所示],其表面粗糙度 S_a 为 3.43 nm, Hugoniot 弹性极限为 10 GPa(参考 Z 切割石英的 Hugoniot 弹性极限^[20])。

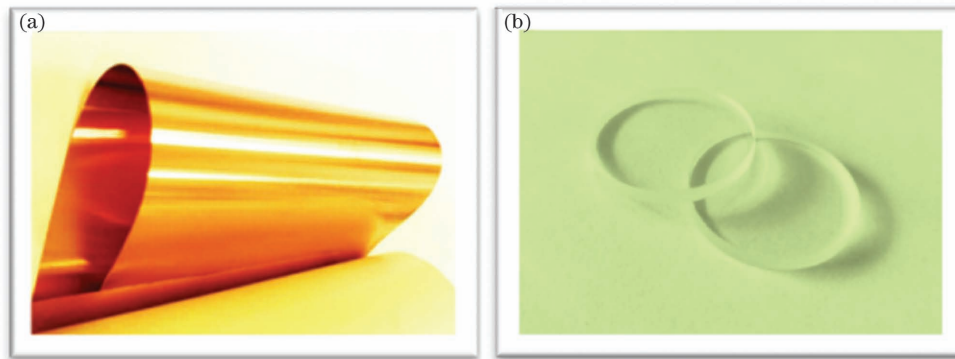


图 2 实验用电子铜箔和 K9 玻璃。(a)铜箔;(b)K9 玻璃

Fig. 2 Electron copper foil and K9 glass used in our experiment. (a) Copper foil; (b) K9 glass

在 MLSF 实验前后,采用原子力显微镜(CSPM5500)对电子铜箔的表面形貌和表面粗糙度进行测量,在接触模式下对样品进行扫描,扫描频率和扫

描面积分别为 0.3 Hz 和 30 $\mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$;表面粗糙度测试后,采用 CSPM imager 4.60 软件进行数据处理,电子铜箔的表面粗糙度值为三次测量的平均值。采

用光学显微镜(Leica DM4 M)对约束层的 K9 玻璃、冲击前后的电子铜箔和底板进行形貌观察。采用双射流抛光技术切割并制备直径为 3 mm 的试样,利用 JEM-2100 透射电子显微镜(TEM)对铜箔的 MLSF 表面进行分析,工作电压为 200 kV。利用 Gatan 1.2.44 软件对高分辨率 TEM 图像进行快速傅里叶逆变换(IFFT)。

3 结果与分析

3.1 激光脉冲能量对表面粗糙度的影响

在研究激光脉冲能量对表面粗糙度的影响时,激光光斑搭接率的选择至关重要。在本实验中,激光光斑能量服从高斯分布,光斑直径为 20 μm。根据图 3(a)可计算出光斑搭接率 T 。计算公式为

$$T = 1 - d/D, \quad (1)$$

式中: d 为相邻两光斑中心的距离; D 为光斑直径。通过振镜可以调节激光的扫描路径和光斑搭接率的大小。如图 3(b)所示,在 0°、90°和 45°方向上,相邻两光斑中心的距离分别为 d_1 、 d_2 和 d_3 。三个方向上的光斑搭接率和光斑中心距之间的关系为

$$T_1 = 1 - d_1/D, T_2 = 1 - d_2/D, T_3 = 1 - d_3/D, \quad (2)$$

$$d_3^2 = d_1^2 + d_2^2, \quad (3)$$

式中: T_1 、 T_2 、 T_3 分别为三个方向上的光斑搭接率。根据三个方向上的几何关系,可得 0°和 90°激光扫描方向上的光斑中心距(d_1 , d_2)为

$$d_1 = d_2 = (1 - T_3) D / \sqrt{2}. \quad (4)$$

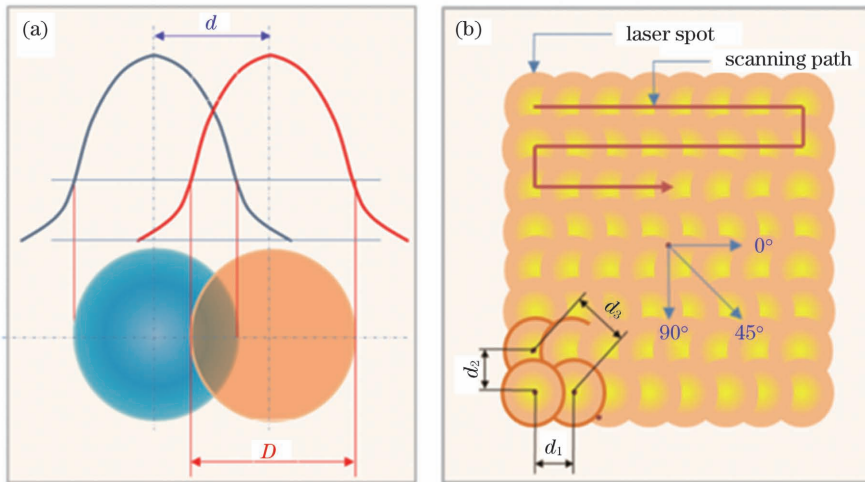


图 3 激光光斑参数和扫描路径示意。(a)激光光斑参数和能量分布;(b)激光光斑的搭接率和扫描路径

Fig. 3 Laser spot parameters and diagram of scanning path. (a) Laser spot parameters and energy distribution; (b) overlapping ratio and scanning path of laser spot

为了获得均匀的压平效果,根据光斑能量分布的特点,选择 45°方向的搭接率为 25%, $d_1 = d_2$ 。因此,计算得到 0°和 90°方向上的光斑中心距和搭接率分别

为 10.6 μm 和 47%。

MLSF 前,铜箔表面的三维形貌和微凸起的高度分布如图 4(a)所示,由于铜箔在轧制过程中受到轧辊

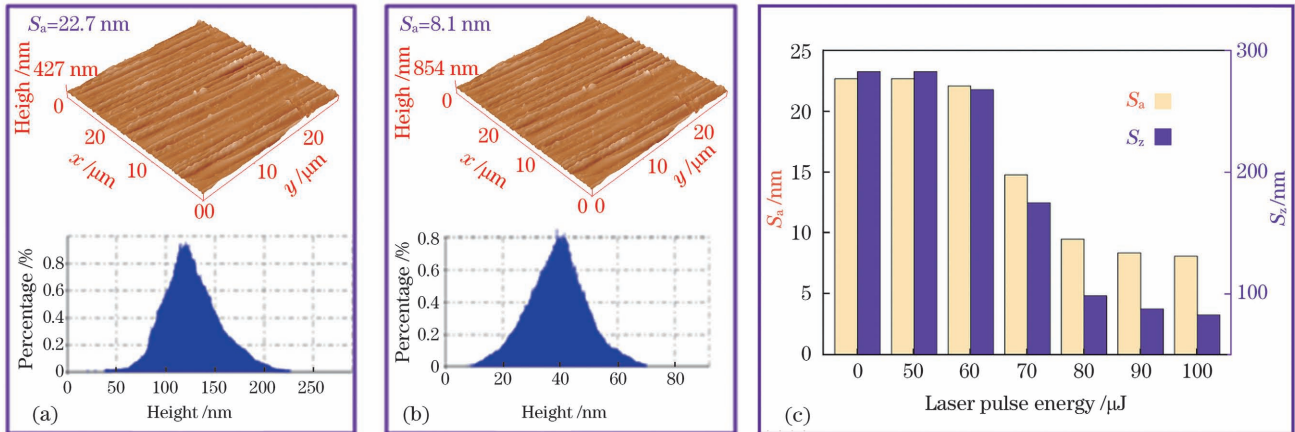


图 4 MLSF 前后铜箔的表面粗糙度。(a)MLSF 前,铜箔的三维形貌和微凸起高度分布;(b) 1 次 MLSF 后,铜箔的三维形貌和微凸起高度分布(激光能量为 100 μJ);(c)搭接率相同时,脉冲能量对 MLSF 效果的影响

Fig. 4 Surface roughness of copper foil before and after MLSF. (a) Three-dimensional morphology and microprotrusion height distribution of copper foil before MLSF; (b) three-dimension morphology and microprotrusion height distribution of copper foil after MLSF for one time (laser pulse energy of 100 μJ); (c) effect of pulse energy on MLSF effect under the fixed overlapping ratio

的摩擦和挤压作用,其表面形成了周期性波纹结构。退火后,铜箔的表面粗糙度约为 22.7 nm,微凸起的高度集中在 39.2~227.5 nm 范围内。图 4(b)是在 100 μJ 激光脉冲能量下平坦化铜箔的三维形貌和微凸起的高度分布,其表面粗糙度约为 8.1 nm。在 MLSF 的作用下,铜箔表面的峰高(占比最大值对应的高度)从 MLSF 前的 123.4 nm 下降到 39.2 nm,降低了 68.2%,面最大高度(S_z)从 MLSF 前的 283 nm 减小到 82.6 nm,微凸起的高度分布范围集中在 8.8~69.9 nm。MLSF 处理后,铜箔表面的波纹结构基本消失,说明铜箔底面在脉冲激光诱导的冲击波作用下发生了严重的挤压变形。由于底板的约束,波纹结构中波峰位置的金属被转移至波谷处。由图 4(c)可知,电子铜箔抛光后的表面粗糙度随着激光脉冲能量的增大而下降,当激光脉冲能量高于 70 μJ 时,铜箔的表面粗糙度均小于 15 nm。因此,通过优化激光脉冲能量可以获得超光滑的电子铜箔表面,表面粗糙度的最小值可达 8.1 nm,比退火铜箔减小了约 64.3%。

3.2 MLSF 次数对表面粗糙度的影响

当激光脉冲能量为 100 μJ 时,不同扫描次数(1次、2次和3次)下 MLSF 铜箔的表面粗糙度如图 5 所示。实验中所用 K9 玻璃底板的表面粗糙度(S_a)仅为 3.43 nm,其表面极其光滑和平整,如图 5(a)所示,微凸起的高度主要集中在 36.3~65.5 nm 范围内。图 5(b)所示为 3 次 MLSF 后铜箔的三维形貌和微凸起的高度分布,此时铜箔的表面粗糙度为 5.0 nm,峰高下降到 39.0 nm,微凸起的高度集中分布于 17.1~60.8 nm 范围内。平坦化 3 次后,铜箔的表面粗糙度与底板玻璃的表面粗糙度非常接近,与原始铜箔相比,

其表面粗糙度减小了约 78%,与平坦化 1 次的铜箔相比,其表面粗糙度减小了约 38.3%。图 4(a)的高度标尺为 427 nm,能清晰地看出原始铜箔表面的轧制条纹,图 5(b)的高度标尺为 122 nm,能够更加清晰地看出原始铜箔表面的平行条纹发生塑性变形后的形态:平坦化后的平行条纹的轮廓高度大幅减小,但周期基本保持不变。由图 5(c)可知,MLSF 铜箔的表面粗糙度随着 MLSF 次数的增加而逐渐减小。图 5(c)所示的表面轮廓也能在一定程度上反映局部凸起的塑性变形特征。

由图 5(c)可以看出,在多次 MLSF 过程中,每次冲击后铜箔表面粗糙度的减小量(下一次冲击后的表面粗糙度与上一次冲击后的表面粗糙度之差)逐渐降低。造成该结果的原因可归结为三点:1)纯铝表面在激光脉冲作用下会因烧蚀形成氧化铝,氧化铝的熔点为 2054 $^{\circ}\text{C}$,而纯铝的熔点仅为 660 $^{\circ}\text{C}$,所以在后续激光脉冲冲击时,熔点很高的氧化铝会大大减小激光脉冲诱导的冲击波强度,该原理类似于金属氧化物的激光清洗机理^[21];2)上一次的激光冲击使吸收层和样品层均产生塑性变形引起了加工硬化^[22-23],从而加剧了后续激光冲击变形的难度;3)上一次冲击时,冲击波使约束层表面产生轻微的冲击损伤,加剧了约束层对紫外光的吸收和光致变色,从而使后续冲击力的损耗增大。

不同 MLSF 次数后约束层(K9 玻璃)表面的光学显微镜照片如图 6 所示。第一次冲击后,K9 玻璃的表面粗糙度下降,由原来的亮色变成暗色,说明 K9 玻璃表面发生了轻微的损伤;第二次冲击后,K9 玻璃表面的颜色加深,而且表面上出现了大量的粗糙结构。随着冲击次数的增加,K9 玻璃表面的损伤越来越严重,

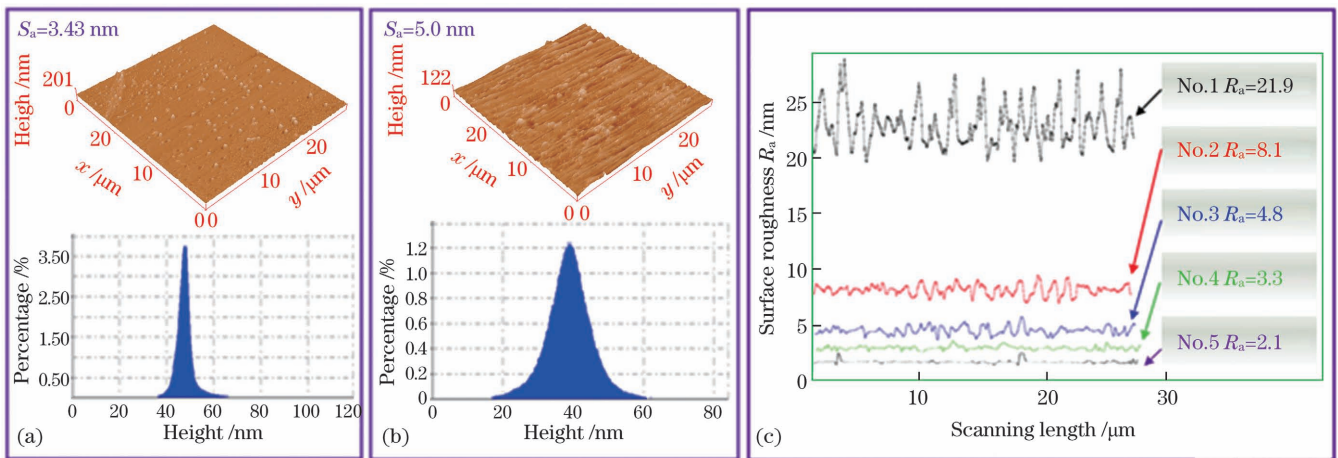


图 5 MLSF 次数对铜箔表面粗糙度的影响。(a)K9 玻璃的三维形貌和微凸起高度分布;(b) 3 次 MLSF 后,铜箔的三维形貌和微凸起高度分布;(c) MLSF 次数对表面粗糙度的影响(No. 1:退火铜箔;No. 2: 1 次 MLSF 后的铜箔;No. 3:2 次 MLSF 后的铜箔;No. 4:3 次 MLSF 后的铜箔;No. 5:K9 玻璃)

Fig. 5 Effects of MLSF times on surface roughness of copper foil. (a) Three-dimensional morphology and microprotrusion height distribution of K9 glass; (b) three-dimensional morphology and microprotrusion height distribution of copper foil after three times MLSF; (c) effect of MLSF times on surface toughness (No. 1: annealed copper foil; No. 2: copper foil flattened by MLSF for one time; No. 3: copper foil flattened by MLSF for two times; No. 4: copper foil flattened by MLSF for three times; No. 5: K9 glass)

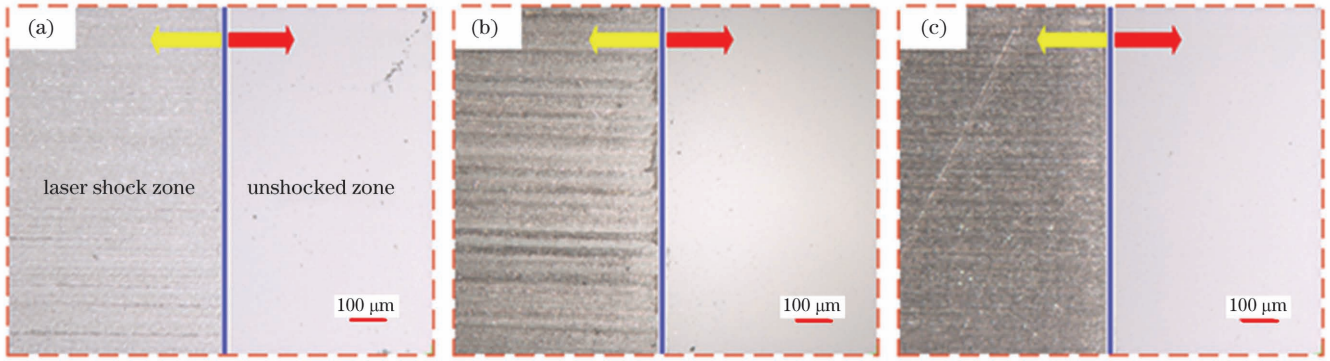


图 6 不同 MLSF 次数后 K9 玻璃表面的损伤情况。(a) 1 次;(b) 2 次;(c) 3 次

Fig. 6 Damage of K9 glass surface after different MLSF times. (a) One time; (b) two times; (c) three times

第三次冲击后, K9 玻璃表面的粗糙程度进一步增加, 说明损伤非常严重。上述实验结果表明, 随着激光冲击次数的增加, 约束层的表面损伤越来越严重, 当冲击次数超过 3 次以后, 其表面已严重损伤, 不能继续用其作为约束层。因此, K9 玻璃表面的损伤情况与铜箔表面粗糙度减小量越来越小的结果相吻合。

3.3 电子铜箔的 MLSF 变形机制

激光脉冲作用到吸收层时, 吸收层由于吸收激光能量而被加热, 吸收层表面因加热等离子化而在约束层和吸收层之间产生高压高速的冲击波。热效应仅熔化吸收层上表面, 吸收层下表面保持完好。因此, 冲击波产生的力效应对电子铜箔下表面的平坦化起着决定

性作用。

激光诱导的冲击应力波经过铝/铜界面时被放大而后作用到铜箔上, 铜箔在冲击应力波的高压下与底板(K9 玻璃)发生撞击, 最后在铜箔表面的冲击区获得与 K9 玻璃相近的表面粗糙度。冲击波放大原理和微尺度冲击波传播原理如图 7 所示。在 MLSF 过程中, 冲击波在层状材料内部传播, 层状介质的声阻抗对冲击波具有调制作用。声阻抗 Z 等于材料固有密度乘以冲击波的波速, 冲击波压力 P 等于粒子速度与声阻抗 Z 的乘积。冲击波传输到吸收层铝箔和样品铜箔界面时, 因反射和透射将形成相应的应力波, 透射波应力(P_T)可表示为

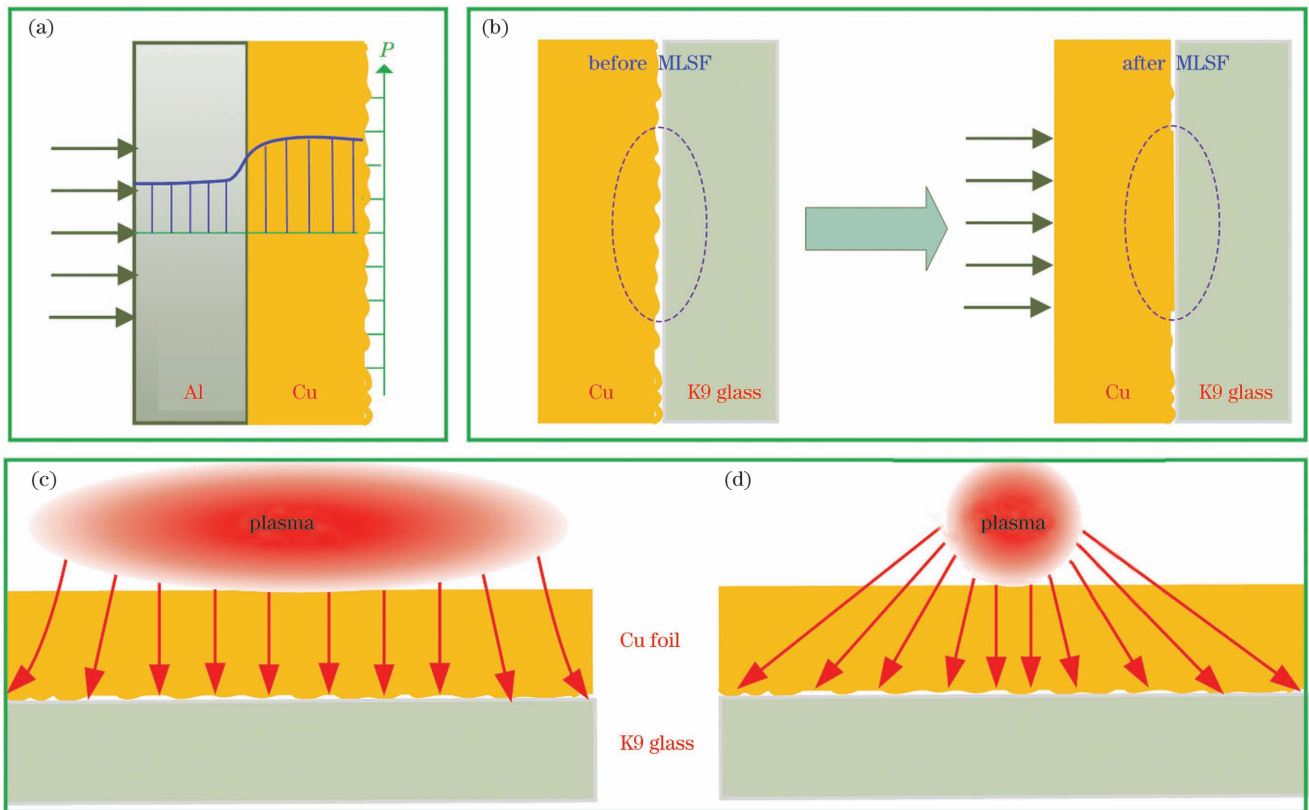


图 7 冲击波放大原理及微尺度冲击波传播原理。(a) 多层介质中冲击波的传播与放大原理;(b) 铜箔的 MLSF 原理;(c) 一维平面波的传播原理;(d) 二维椭球波的传播原理

Fig. 7 Amplification principle of shock wave and propagation principle of microscale shock wave. (a) Propagation and amplification principles of shock wave in multilayered media; (b) MLSF principle of copper foil; (c) one dimensional plane wave propagation principle; (d) two dimensional ellipsoid wave propagation principle

$$P_T = 2PZ_2 / (Z_1 + Z_2), \quad (5)$$

式中: Z_1 为吸收层铝箔的声阻抗; Z_2 为样品铜箔的声阻抗。本文中的吸收层铝箔和样品铜箔为双层介质, 激光烧蚀吸收层形成的冲击波传输到铝/铜界面时将发生反射和透射。由于铝和铜的声阻抗分别为 $Z_1 = 1.69 \times 10^6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 和 $Z_2 = 4.18 \times 10^6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, 因此冲击波经过铝/铜界面时被放大约 1.42 倍, 如图 7(a) 所示。放大后的冲击波继续向前传播, 铜箔与 K9 玻璃接触的表面微凸起在超高压下发生挤压变形, 由于光滑的 K9 玻璃的阻碍作用, 铜箔表面微凸起部位的金属被冲击波挤压至微凸起周边的凹陷处, 并按照 K9 玻璃的表面形貌产生一定程度的变形, 最终导致微凸起高度下降, 且铜箔表面形貌与 K9 玻璃表面形貌更贴近, 如图 7(b) 所示。此外, 经过 MLSF 后, 铜箔表面的缺陷减少, 微波纹结构消失, 这也使得铜箔表面更为光滑, 大大降低了铜箔的表面粗糙度。

冲击波产生的力效应包括两个方面: 一是对电子铜箔的上表面进行冲击, 导致铜箔变形和强化; 二是吸收层和电子铜箔在冲击力的作用下向下高速运动, 撞击高硬度的底板 K9 玻璃。由于电子铜箔和铝箔的表面不光滑, 表面的微凸起对冲击力仅能起到有限的支撑作用, 在撞击过程中率先发生塑性变形。该原理类似于激光驱动飞片的复型^[24]。另外, 根据图 4(b)、图 5(b) 和图 5(c) 所示的激光冲击平坦化后的表面形态和截面轮廓可知, 光斑搭接处的电子铜箔表面并没有明显的起伏, 其主要原因可归结为以下两点: 1) 本实验中采用的最大激光脉冲能量为 $100 \mu\text{J}$, 远小于文献^[16]中的激光能量, 不足以引起电子铜箔的剧烈塑性变形(见图 8 所示的组织分析), 不会导致光斑搭接处电子铜箔表面的较大起伏。2) 文献^[16]中的光斑尺寸远大于电子铜箔的厚度, 可以认为应力波是向电子铜箔内传播的一维平面波, 光斑内与光斑外的界限较明确, 如图 7(c) 所示, 导致光斑搭接处电子铜箔的表面轮廓起伏较大; 而本文中激光光斑尺寸与电子铜箔的厚度相当, 应力波以椭球波的形式向下传播^[25], 如图 7(d) 所示, 光斑内外没有明确的界限, 因此光斑搭接处电子铜箔的表面轮廓没有较大起伏。因此, MLSF 方法可以在电子铜箔表面实现更均匀的抛光效果。

图 8 所示为电子铜箔 MLSF 前后的显微组织。在 MLSF 之前, 对铜箔进行退火处理, 以减少晶体缺陷并降低残余应力, 获得均匀的组织, 如图 8(a)~(c) 所示。退火前的铜箔属于压延铜箔, 经过再结晶退火以后, 在铜箔内将形成退火孪晶。轧制变形后的铜箔同时还含有大量的晶格缺陷(点缺陷和位错等)以及由此引起的晶格畸变, 经再结晶退火后, 尽管发生了点缺陷和位错的扩散湮灭, 但仍含有少量位错等缺陷引起的晶格畸变, 如图 8(c) 所示。铜箔在 MLSF 过程中发

生高应变率的塑性变形, 并伴随着铜箔内部显微结构的演化。金属的塑性变形主要通过滑移和孪晶两种方式实现。与不锈钢、铝不同的是, 本文中采用的铜属于中等层错能金属(层错能为 $40 \times 10^{-3} \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$), 其变形方式更为复杂, 通常包含滑移和孪晶两种形式^[26]。本课题组前期在对铜箔进行激光冲击平坦化时发现铜箔内形成了位错缠结、位错胞和少量的变形孪晶^[16]。图 8(d)~(f) 所示为本文 MLSF 铜箔的 TEM 显微结构。根据 Fabbro 模型和 Johnson-Cook (J-C) 模型, 本实验中的激光冲击的峰值压力约为 3.2 GPa, 应变率约为 10^4 s^{-1} 。在铜箔变形初期, 高速冲击波能够触发晶粒内部几乎所有的位错源, 同时激发多滑移系统上的位错雪崩^[10]。在外力的作用下, 大量位错结构在晶界和孪晶界处塞积, 导致其附近形成了大量的位错胞和位错缠结, 位错胞直径约为 400 nm。但在本文的实验条件下没有发现变形孪晶。现有的研究表明, 高应变率、大应变和高压条件能够将工件材料的局部应力提高到临界孪生应力以上, 从而满足孪晶的形成条件^[27-28]。

在激光冲击平坦化过程中, 激光诱导的冲击波的峰值压力约为 3.6 GPa^[16], 随着铜箔变形的增大, 铜箔内部的位错密度大大增加, 形成了位错胞等多种形态的位错结构。由塑性滑移变形产生的各向异性应力场分布在晶粒内部位错的周围, 当铜箔的内应力超过局部临界孪生应力时, 铜箔内部将产生少量变形孪晶。因此, 文献^[14]中铜箔发生塑性变形的主要方式是位错滑移, 而少量的形变孪生是铜箔塑性变形的补充机制。由于本实验中冲击波的峰值压力较小, 并没有发现孪晶的形成, 仅观察到了大量的晶格畸变、位错胞和位错缠结。通常, 在低层错能材料和高层错能材料中, 形变孪生和动态再结晶分别是它们主要的晶粒细化方式, 晶粒细化方式也相对单一^[29]。与前两种材料相比, 铜箔属于中等层错能材料, 因此孪晶破碎和位错滑移/动态再结晶是其可能的晶粒细化方式。激光冲击不锈钢形成孪晶, 持续的变形将促使孪晶断裂和破碎, 形成更小尺寸的孪晶片层, 孪晶内部产生二次孪生, 从而使晶粒得以细化^[30]。对高层错能的铝箔进行激光冲击压印, 可在产生位错滑移和高密度位错的同时, 在动态再结晶的作用下实现晶粒细化^[10]。但在本实验中, MLSF 铜箔内并没有观察到晶粒细化现象, 仅仅形成了图 8(d) 所示的位错胞以及图 8(f) 所示的晶格畸变, 位错胞还没有演化成亚晶粒。在金属材料的激光冲击喷丸过程中, 晶粒内部会形成各种位错组态, 如位错胞、位错墙、位错缠结等, 并不会发生晶粒细化^[31-32]。Nagarajan 等^[33]在研究铜箔的激光冲击时发现材料的动态再结晶过程是与其变形量有关的, 即动态再结晶和晶粒细化是由大塑性变形引起的, 当塑性变形较小时, 动态再结晶现象将不会发生。

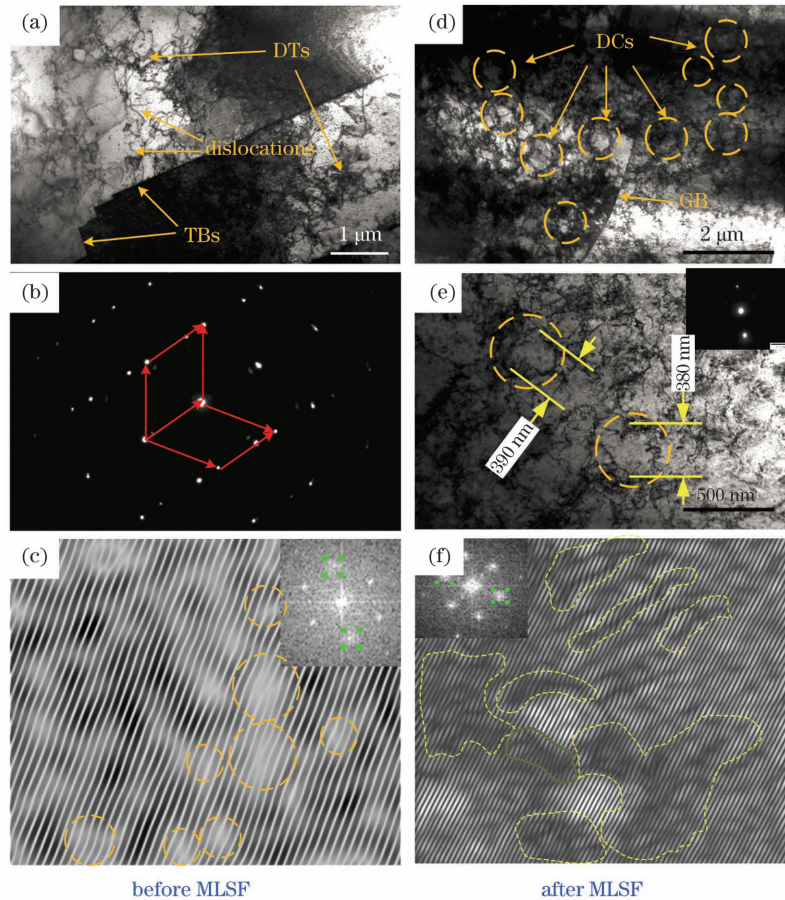


图 8 退火铜箔和平坦化电子铜箔的显微结构。(a)退火孪晶和位错的 TEM 照片;(b)退火孪晶的选区电子衍射(SAED)图样;(c)退火铜箔微区域的 IFFT;(d)平坦化电子铜箔晶界附近位错胞的 TEM 照片;(e)平坦化电子铜箔位错胞、位错缠结的 TEM 照片和 SAED 图样;(f)平坦化电子铜箔微区域的 IFFT(DT:位错缠结;TB:孪晶界;DC:位错胞;GB:晶界)

Fig. 8 Microstructures in annealed and flattened copper foils. (a) Transmission electron microscopy (TEM) image of annealing twins and dislocations; (b) selected area electron diffraction (SAED) pattern of annealing twin; (c) inverse fast Fourier transform (IFFT) image of micro-region of annealed copper foil; (d) TEM image of dislocation cells near grain boundary of flattened copper foil; (e) TEM image and SAED pattern of dislocation cells and dislocation tangles in flattened copper foil; (f) IFFT image of micro-region of flattened copper foil (DT: dislocation tangle; TB: twin boundary; DC: dislocation cell; GB: grain boundary)

通过分析 MLSF 前后电子铜箔内部的显微组织可知,激光冲击仅在电子铜箔内诱导了大量的位错缠结、位错胞和晶格畸变,并没有诱导变形孪晶和晶粒细化。该现象主要归因于 MLSF 时较小的激光脉冲能量以及以二维椭球波形式传播的冲击波,此时,作用在单位面积铜箔上的冲击波的峰值压力较小,不能引起铜箔的大塑性变形,不足以诱发具有中等层错能的金属铜箔发生形变孪生和动态再结晶,因而无法实现电子铜箔的晶粒细化。可见,电子铜箔的 MLSF 主要是由表面微凸起的塑性变形引起的。

与块状金属材料或金属箔在高脉冲能量下的激光冲击喷丸机理不同^[34],MLSF 的变形机理为金属箔内部的小塑性变形和下表面附近的大塑性变形。这主要是因为:1)根据文献[17]对铝箔激光冲击抛光过程的分子动力学仿真结果,在激光冲击的初始阶段,应力波由金属箔的上表面向下表面传播,金属箔下表面微凸起的尖端率先发生压缩变形并沿 45°方向向材料内部

滑移;随着滑移的进行,微凸起基本填平了微凸起之间的凹槽区域。金属箔内部原子排列较规则且内应力较小,表明其内部的塑性变形较小;而金属箔下表面一定厚度内(特别是微凸起区域)的内应力较大且原子排列不规则,表明金属箔下表面层经历了严重的塑性变形,因此下表面的粗糙度大幅减小,如图 9(a)所示^[17]。2)在本文的 MLSF 实验中,由图 8 的 TEM 结果可知,铜箔内部仅产生了较多的位错胞、位错缠结和晶格畸变,并没有出现由大塑性变形导致的形变孪生和晶粒细化现象,说明电子铜箔内部仅发生了较小的塑性变形。图 9(b)和图 9(c)分别为电子铜箔在 MLSF 前后的表面轮廓,可以看出冲击前后表面微凸起的周期基本一致,结合图 5(c)可知两者的差别仅为微凸起高度的差别,说明 MLSF 使电子铜箔下表面和微凸起发生了大塑性变形,从而使得下表面粗糙度大幅减小。图 8 中所示的 TEM 照片、图 9 所示的轮廓曲线均与图 9(a)所示的分子动力学仿真结果一致,说明 MLSF

的变形机制是金属箔内部的小塑性变形及其下表面附近的大塑性变形,如图 9(d)所示。通过调节激光脉冲

能量和扫描次数,可以实现电子铜箔下表面粗糙度的调控。

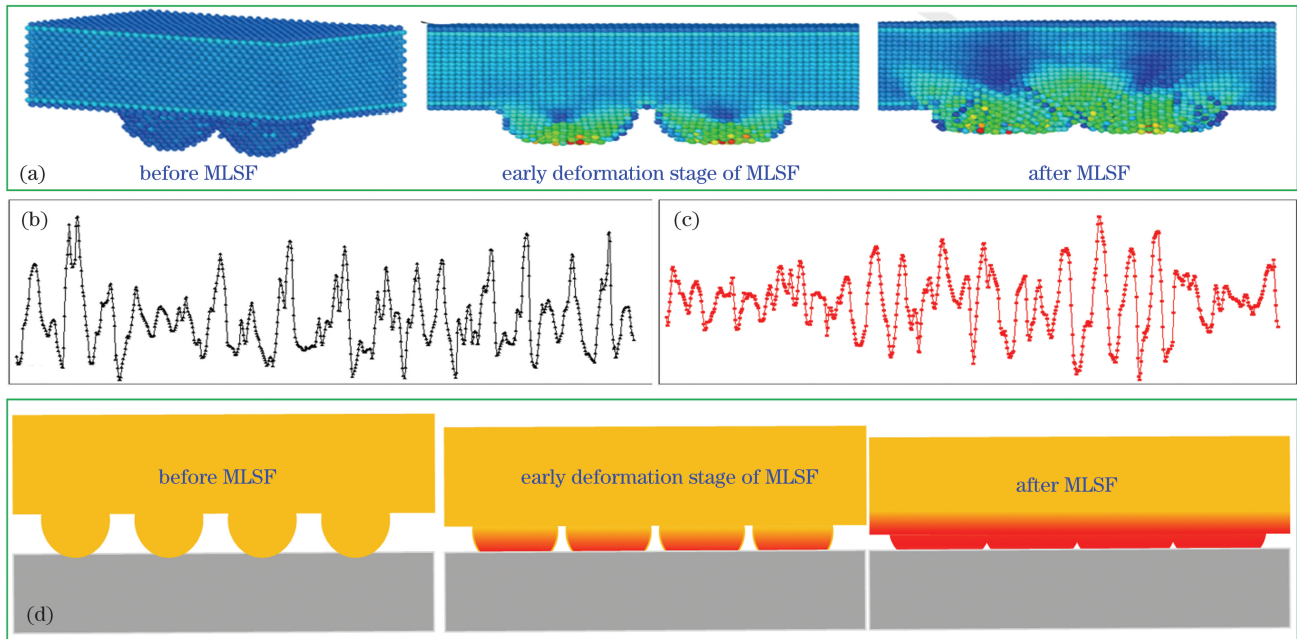


图 9 MLSF 的表面变形机理。(a)激光冲击抛光的分子动力学模拟^[17]; (b)原始铜箔的表面轮廓曲线; (c) 100 μJ 单次激光冲击后电子铜箔的表面轮廓曲线(为便于对比,对其高度进行了放大); (d) MLSF 的表面变形机理示意图

Fig. 9 Surface deformation mechanism of MLSF. (a) Molecular dynamics simulation of laser shock polishing^[17]; (b) surface contour curve of original copper foil; (c) surface profile of electronic copper foil after 100 μJ single laser shock (its height is amplified for comparison); (d) schematic of surface deformation mechanism of MLSF

4 结 论

本文研究了激光脉冲能量和冲击次数对电子铜箔 MLSF 的影响及 MLSF 的表面变形机理,得到的主要结论如下:1) MLSF 能有效降低电子铜箔的表面粗糙度,当激光脉冲能量为 100 μJ 时,铜箔的表面粗糙度从原始的 22.7 nm 降低到 8.1 nm,降幅约为 64.3%; 2) 在多次 MLSF 实验中,电子铜箔经 3 次 MLSF 处理后的效果较好,其表面粗糙度从单次 MLSF 后的 8.1 nm 下降到 3 次 MLSF 后的 5.0 nm,下降了 38.3%; 3) MLSF 形成了大量不同组态的位错结构,如位错缠结、小尺寸位错胞等。金属箔内部的小塑性变形和下表面附近的大塑性变形是 MLSF 的表面变形机制。

参 考 文 献

- [1] Bordatchev E V, Hafiz A M K, Tutunea-Fatan O R. Performance of laser polishing in finishing of metallic surfaces [J]. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology, 2014, 73(1/2/3/4): 35-52.
- [2] Zhong Z W. Recent advances in polishing of advanced materials [J]. Materials and Manufacturing Processes, 2008, 23(5): 449-456.
- [3] Jiang T, Gao S, Tian Z N, et al. Fabrication of diamond ultra-fine structures by femtosecond laser [J]. Chinese Optics Letters, 2020, 18(10): 101402.
- [4] Wang S Y, Ma Y W, Li X Y, et al. Highly sensitive torsion sensor based on triangular-prism-shaped long-period fiber gratings [J]. Chinese Optics Letters, 2021, 19(4): 041202.
- [5] Temmler A, Liu D, Preußner J, et al. Influence of laser polishing on surface roughness and microstructural properties of the remelted surface boundary layer of tool steel H11 [J]. Materials & Design, 2020, 192: 108689.
- [6] 李应红, 何卫锋, 周留成. 激光冲击复合强化机理及在航空发动机部件上的应用研究 [J]. 中国科学: 技术科学, 2015, 45(1): 1-8.
Li Y H, He W F, Zhou L C. The strengthening mechanism of laser shock processing and its application on the aero-engine components [J]. Scientia Sinica Technologica, 2015, 45(1): 1-8.
- [7] 朱然, 张永康, 孙桂芳, 等. 三维平顶光束激光冲击 2024 铝合金的残余应力场数值模拟 [J]. 中国激光, 2017, 44(8): 0802007.
Zhu R, Zhang Y K, Sun G F, et al. Numerical simulation of residual stress fields in three-dimensional flattened laser shocking of 2024 aluminum alloy [J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(8): 0802007.
- [8] Cheng G J, Pirzada D. Characterizations on microscale laser dynamic forming of metal foil [C]//Proceedings of ASME 2006 International Manufacturing Science and Engineering Conference, October 8-11, 2006, Ypsilanti, Michigan, USA. New York: ASME Press, 2008: 29-35.
- [9] Gao H, Hu Y W, Xuan Y, et al. Large-scale nanoshaping of ultrasmooth 3D crystalline metallic structures [J]. Science, 2014, 346(6215): 1352-1356.
- [10] Shen Z B, Gu C X, Liu H X, et al. Fabricating three-dimensional array features on metallic foil surface using overlapping laser shock embossing [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2013, 51(8): 973-977.
- [11] Wang X, Shen Z B, Gu C X, et al. Laser indirect shock micro-embossing of commercially pure copper and titanium sheet [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2014, 56(5): 74-82.
- [12] Lu G X, Liu J D, Zhou Y Z, et al. Differences in microscale surface contours of metallic targets subjected to laser shock [J]. Optics Communications, 2019, 436: 188-191.
- [13] Dai F Z, Geng J, Ren X D, et al. Surface roughness control of

- LY2 aluminum alloy milled surface subjected to laser shock wave planishing processing[J]. *Applied Surface Science*, 2019, 486: 121-127.
- [14] Dai F Z, Zhou J Z, Lu J Z, et al. A technique to decrease surface roughness in overlapping laser shock peening [J]. *Applied Surface Science*, 2016, 370: 501-507.
- [15] 刘昊, 杨海峰, 贺海东, 等. 电子铜箔和液晶聚合物的激光复合焊接[J]. *中国激光*, 2022, 49(2): 0202010.
Liu H, Yang H F, He H D, et al. Laser hybrid welding of electronic copper foil and liquid crystal polymer [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(2): 0202010.
- [16] Yang H F, Xiong F, Wang Y, et al. Manufacturing profile-free copper foil using laser shock flattening[J]. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, 2020, 152: 103542.
- [17] Zhang B C, Yang H F, Liu H, et al. Crystallographic features and microstructure evolution of sandwich warm laser polishing: the case of aluminum foil[J]. *Applied Surface Science*, 2022, 573: 151557.
- [18] Ye C, Liao Y L, Cheng G J. Warm laser shock peening driven nanostructures and their effects on fatigue performance in aluminum alloy 6160 [J]. *Advanced Engineering Materials*, 2010, 12(4): 291-297.
- [19] Fabbro R, Fournier J, Ballard P, et al. Physical study of laser-produced plasma in confined geometry [J]. *Journal of Applied Physics*, 1990, 68(2): 775-784.
- [20] Lloyd E C. *Accurate characterization of the high-pressure environment [R]*. Washington, D. C.: National Bureau of Standards, 1971.
- [21] 雷正龙, 孙浩然, 陈彦宾, 等. 不同激光清洗方法对高强钢表面锈蚀层的去除研究[J]. *中国激光*, 2019, 46(7): 0702003.
Lei Z L, Sun H R, Chen Y B, et al. Elimination of rusting layer from high-strength steel surface using different laser cleaning methods[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(7): 0702003.
- [22] Yang H F, Jia L, Liu K, et al. High precision complete forming process of metal microstructure induced by laser shock imprinting [J]. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2020, 108(1/2): 143-155.
- [23] Man J X, Yang H F, Wang Y F, et al. Study on controllable surface morphology of the micro-pattern fabricated on metallic foil by laser shock imprinting[J]. *Optics & Laser Technology*, 2019, 119: 105669.
- [24] Zhou M, Huang T, Cai L. The novel nanosecond laser micro-manufacturing of three-dimensional metallic structures [J]. *Applied Physics A*, 2008, 90(2): 293-297.
- [25] 樊玉杰. 激光微喷丸强化的压力模型及冲击效应研究[D]. 镇江: 江苏大学, 2011.
Fan Y J. Investigation of micro laser shock peening on the pressure model and impact effects [D]. Zhenjiang: Jiangsu University, 2011.
- [26] Hu Y, Liu H X, Wang X, et al. Formation of nanostructure and nano-hardness characterization on the meso-scale workpiece by a novel laser indirect shock forming method[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2013, 84(4): 045001.
- [27] Schneider M S, Kad B, Kalantar D H, et al. Laser shock compression of copper and copper-aluminum alloys [J]. *International Journal of Impact Engineering*, 2005, 32(1/2/3/4): 473-507.
- [28] Huang C X, Wang K, Wu S D, et al. Deformation twinning in polycrystalline copper at room temperature and low strain rate [J]. *Acta Materialia*, 2006, 54(3): 655-665.
- [29] An X H, Lin Q Y, Wu S D, et al. Significance of stacking fault energy on microstructural evolution in Cu and Cu-Al alloys processed by high-pressure torsion[J]. *Philosophical Magazine*, 2011, 91(25): 3307-3326.
- [30] Lu J Z, Deng W W, Luo K Y, et al. Surface EBSD analysis and strengthening mechanism of AISI304 stainless steel subjected to massive LSP treatment with different pulse energies [J]. *Materials Characterization*, 2017, 125: 99-107.
- [31] Umaphathi A, Swaroop S. Residual stress distribution and microstructure of a multiple laser-peened near-alpha titanium alloy [J]. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 2018, 27(5): 2466-2474.
- [32] 聂祥樊, 李应红, 何卫锋, 等. DZ17G 定向凝固高温合金的激光冲击强化方法与疲劳试验研究[J]. *稀有金属材料与工程*, 2018, 47(10): 3141-3147.
Nie X F, Li Y H, He W F, et al. Micro-scale laser shock peening method and fatigue test of DZ17G directionally solidified superalloy[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2018, 47(10): 3141-3147.
- [33] Nagarajan B, Castagne S, Wang Z K, et al. EBSD analysis of plastic deformation of copper foils by flexible pad laser shock forming[J]. *Applied Physics A*, 2015, 121(2): 695-706.
- [34] Pu T Y, Liu W W, Wang Y L, et al. A novel laser shock post-processing technique on the laser-induced damage resistance of 1ω $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ multilayer coatings [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2021, 9: e19.

Microscale Laser Shock Flattening of Ultrasmooth Electronic Copper Foil

Zhao Enlan^{1,2}, Wang Qingqing^{1,2*}, Yang Haifeng^{1,2}, Peng Yuxing^{1,2}

¹ School of Mechatronic Engineering, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, Jiangsu, China;

² Jiangsu Collaborative Innovation Center of Intelligent Mining Equipment, Xuzhou 221116, Jiangsu, China

Abstract

Objective Electronic copper foil is an important material for circuit boards and plays an essential role in interconnecting circuits and electronic components. Ultrasmooth electronic copper foils are a crucial for manufacturing high-end circuit boards. However, traditional polishing methods have some limitations in the high-efficiency polishing of large-area ultrathin metal foils. Laser shock peening and forming is a manufacturing technology that uses ultrahigh pressure and high-speed shock force generated by a short-pulse laser to achieve a high strain rate plastic deformation of materials. The laser shock peening can improve the material's comprehensive mechanical properties by inducing grain refinement and residual compressive stress on its surface. Through shock wave pressure, the laser shock imprinting causes plastic deformation to form a metal foil, allowing for fabricating micro and nanostructures on the metal foil surface, which can be used in electronic and plasma sensing. Because the laser shock technology can cause plastic deformation on the metal foil surface,

it can enable the surface polishing of electronic copper foils. It has been reported that a shock wave generated by a high-energy pulsed laser strikes the metal foil with the bottom plate to duplicate the smooth surface of the bottom plate and obtain less surface roughness of the metal foil. However, because of the large pulse energy and spot size, large plastic deformation occurs, causing profile fluctuation of the spot transition zone. Therefore, studying the microscale laser shock flattening (MLSF) of electronic copper foils using a low-energy pulsed laser is important.

Methods The MLSF experimental device comprised a pulsed laser, beam expander and collimator, galvanometer system, and target. The pulse width, wavelength, and repetition frequency of the laser were 10 ns, 355 nm, and 1 kHz, respectively. The collimated laser beam was scanned using a galvanometer and was focused on the surface of an electronic copper foil, with a focusing diameter of 20 μm . The morphology and roughness of the electronic copper foil were measured before and after the MLSF using an atomic force microscope (CSPM5500). The samples were scanned in the contact mode. The scanning frequency and area were 0.3 Hz and 30 $\mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$, respectively. After performing the roughness test, the data was processed using the CSPM imager 4.60 software. The roughness value of the electronic copper foil is the average value of three measurements. The samples with a diameter of 3 mm were cut and subsequently prepared using double jet polishing. A transmission electron microscope (TEM) JEM2100 with a working voltage of 200 kV was used to perform the surface transmission analysis of the copper foil. The Gatan 1.2.44 software was used to perform the inverse fast Fourier transform (IFFT) and filtering of high-resolution TEM images.

Results and Discussions The surface roughness of the annealed copper foil is approximately 22.7 nm, and the height distribution of microprotrusions is concentrated in the range of 39.2–227.5 nm. When the laser pulse energy is 100 μJ , the surface roughness of the flattened copper foil is approximately 8.1 nm. After performing MLSF three times, the surface roughness of the copper foil is 5.0 nm. The surface roughness of the electronic copper foil gradually decreases with increasing MLSF. When the laser-induced stress wave passes through the Al/Cu interface, it amplifies and acts on the copper foil. Thus, the copper foil collides with the base plate (K9 glass) under the high pressure of the stress wave. Finally, a surface roughness closing to that of the K9 glass is obtained in the shock area of the copper foil surface (Fig. 7). There are no obvious fluctuations at the spot overlap zone on the surface of the electronic copper foil according to the surface morphology and cross-sectional profile of the foil after the MLSF (Figs. 4 and 5). According to the microstructure analysis of the electronic copper foil before and after the MLSF, laser shock only induces numerous dislocation entanglements, dislocation cells, and lattice distortions in the electronic copper foil. However, it does not lead to the formation of deformation twins and grain refinement. This phenomenon primarily occurs due to the use of small laser pulse energy and the propagation form of the two-dimensional ellipsoidal shock wave in MLSF. Thus, the peak pressure of the shock wave is small, which cannot cause large plastic deformation of the copper foil and is insufficient to induce deformation twins and dynamic recrystallization of the copper foil that has a medium stacking fault energy. The MLSF of the electronic copper foil is primarily caused by the plastic deformation of microprotrusions on its surface.

Conclusions The MLSF of electronic copper foils is studied. The effects of laser pulse energy and shock times on the MLSF as well as the surface deformation mechanism of the MLSF are studied. The MLSF can effectively reduce the surface roughness of the electronic copper foil, reaching a minimum of 5.0 nm. The MLSF leads to the formation of numerous dislocation structures with different configurations, such as dislocation entanglements and small dislocation cells. The small plastic deformation inside the metal foil and the large plastic deformation near the bottom surface are the surface deformation mechanisms of the MLSF.

Key words laser technique; laser shock; microscale; electronic copper foil; surface roughness; surface deformation mechanism