

## 激光与光电子学进展

## 脉冲宽度对激光驱动微滴前向转移的影响

程帅康, 吴迪, 罗国虎, 胡永祥\*

上海交通大学机械与动力工程学院机械系统与振动国家重点实验室, 上海 200240

**摘要** 激光驱动微滴前向转移工艺在三维金属微结构打印方面具有重要的应用前景。脉冲宽度是影响微滴转移行为的一个重要因素,但是目前的研究对于不同脉宽下微滴产生以及沉积行为认识不够充分。本文以 500 nm 铜膜为对象,开展了 5 种不同脉宽下激光驱动微滴前向转移实验。研究表明,随着脉冲宽度的增大,获得完整微滴的激光驱动微滴前向转移工艺最低以及最高能流密度阈值逐渐增高,同时脉宽对沉积微滴形貌有显著影响。根据实验确定了不同脉宽下的激光驱动微滴前向转移工艺区间,并统计了不同脉宽下微滴沉积的材料转移比率。最后利用振镜线扫描方式实现大面积微滴阵列的制备。

**关键词** 激光器与激光光学; 微滴增材制造; 脉冲宽度; 激光诱导; 金属微滴

中图分类号 V261.8

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP223006

## Effect of Pulse Duration on Laser-Induced Forward Transfer of Microdroplets

Cheng Shuaikang, Wu Di, Luo Guohu, Hu Yongxiang\*

State Key Laboratory of Mechanical System and Vibration, School of Mechanical Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China

**Abstract** Laser-induced forward transfer has application prospects in three-dimensional metal microstructure printing. Pulse duration is a critical factor that influences the droplet transfer behavior, but droplet generation and deposition behavior under different pulse durations are unclear at present. In this study, 500 nm copper films were used as the research object to perform a laser-induced forward transfer experiment at five pulse durations. The results show that with an increase in pulse duration, the minimum and maximum energy fluence thresholds of the laser-induced forward transfer process to form complete microdroplets gradually increase, and the pulse duration significantly influences the morphology of deposited microdroplets. Based on the experiment, the processing map of laser-induced forward transfer under different pulse durations was plotted, and the material transfer rates of microdroplet deposition at different pulse durations were calculated. Finally, the large-area microdroplets array was printed using the scan head line-scanning method.

**Key words** laser and laser optics; microdroplet additive manufacturing; pulse duration; laser induction; metal microdroplets

## 1 引言

激光驱动微滴前向转移(LIFT)工艺,又称激光转印,是一种高分辨率 3D 直写技术,最早由 Bohandy 等<sup>[1]</sup>在 20 世纪 80 年代提出,并成功转移了铜膜。由于其工艺简单,并兼具灵活性高、成本低、精度高等特点,自工艺提出以来就得到了广泛关注。2010 年, Kuznetsov 等<sup>[2]</sup>利用激光转印制造了直径为 180 nm 的

纳米球阵列,这种分辨率足以满足常用微结构的制造需求。同时 LIFT 工艺与大部分金属、半导体材料兼容,并且可在空气环境下进行,这也使其成为迄今为止最通用的微纳加工技术之一。目前该工艺已经被广泛应用于微电子元件制备<sup>[3-4]</sup>、聚合物材料打印<sup>[5-6]</sup>等领域,具有巨大的发展潜力。

LIFT 工艺参数众多,薄膜材料、厚度、激光光斑尺寸、转印距离、激光脉宽等多种条件共同影响其微滴沉

收稿日期: 2022-11-09; 修回日期: 2022-11-20; 录用日期: 2022-11-30; 网络首发日期: 2023-01-04

基金项目: 国家自然科学基金优秀青年基金项目“激光冲击特种制造”(51922069)

通信作者: huyx@sjtu.edu.cn

积的稳定性。描述不同工艺参数下的微滴形貌特点以及对应工艺区间是 LIFT 工艺研究中的重点问题。杨丽<sup>[7]</sup>系统地分析了不同厚度下的铜膜、铝膜的转移能量阈值以及沉积点形貌与激光能量的关系。Zergioti 等<sup>[8]</sup>利用 500 fs 激光研究了铬膜的激光转印实验,研究发现,随着转印距离的增加,微滴飞行偏差扩大,沉积物质可扩大至数倍光斑。LIFT 的脉宽可用范围十分广泛,从毫秒<sup>[9]</sup>到飞秒<sup>[10]</sup>均被验证可行,降低脉宽可以减小激光光斑的热扩散,从而获得更高的转印精度,其中飞秒精度可以达到几百纳米<sup>[11]</sup>。随着纳秒短脉冲光纤激光技术的发展,激光器的脉宽调制成为可能,从而为 LIFT 工艺提供了更多可选择的范围。迄今为止,以往的研究工作主要集中在某一特定脉宽的激光转印实验,尤其对于应用比较广泛的纳秒量级下不同脉宽微滴产生以及沉积行为认识不充分,因此开展相关实验确认该类脉宽对于 LIFT 工艺的影响具有重要意义。

本文选取了 5 种不同纳秒脉宽激光,进行了 500 nm 铜薄膜的打印实验,并对沉积结果进行了光学显微镜、

扫描电子显微镜(SEM)分析,对不同脉宽下的 LIFT 工艺进行探索。系统研究了激光脉宽以及激光能流密度对于微滴尺寸形貌的影响,确定了不同脉宽下的 LIFT 工艺区间,并统计了不同脉宽下微滴沉积的材料转移比率。同时利用振镜线扫描方式高效率地完成大面积的材料转移,实现了均匀分布的微滴阵列制备,验证了工艺区间的有效性。

## 2 实验系统与原理

### 2.1 LIFT 工艺原理

LIFT 工艺的基本工作原理如图 1(a)所示,利用激光辐照附着在透明载体上的金属薄膜,靠近透明载体的薄膜吸收激光能量迅速熔化,同时在金属薄膜与透明基底界面形成局部高压,驱动熔化金属喷射,形成金属微滴,通过两个基底之间的间隙飞向接收基底。控制透明载体和接收基底的相对位置运动,可以实现金属三维微结构的打印。该方法是一种无喷嘴、非接触式的具有高空间分辨率的微纳增材制造技术。

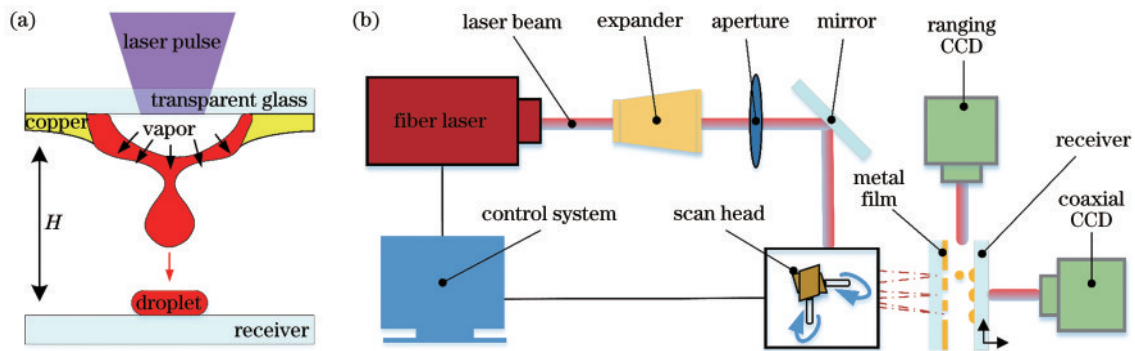


图 1 LIFT(a)过程和(b)实验装置原理图

Fig. 1 Schematic of LIFT (a) process and (b) experimental setup

实验原理图如图 1(b)所示,脉冲激光通过扩束镜、光阑等光学元件整形后进入两轴振镜模块,通过对激光器以及振镜模块的协调控制实现对薄膜不同位置的快速加工。铜膜与接收基底的间距调节通过二维位移台结合 CCD 相机来实现。此外,同轴 CCD 相机可以实时观察薄膜加工情况。

### 2.2 实验装置与薄膜制备

本文采用的激光器为脉冲光纤激光器(RFL-P20MX),该光源能够稳定输出中心波长为 1064 nm 的纳秒脉冲激光。激光器输出光束呈高斯分布,脉冲宽度、频率值、单脉冲功率值均可调,其中脉宽范围为 2~600 ns,重复频率范围为 1~2000 kHz,单脉冲能量范围为 0.01~0.71 mJ。在振镜辅助下,可在 50 mm×50 mm 范围的  $x$ - $y$  平面内实现聚焦激光辐照金属膜位置的精确控制。实验装置实物图如图 2(a)所示。实验所采用的源基底为圆形石英玻璃(JGS-1,红外光透过率超过 90%),厚度为 8 mm,直径为 25.4 mm,采用磁控溅射的方法在石英玻璃上沉积 500 nm 的铜膜,如

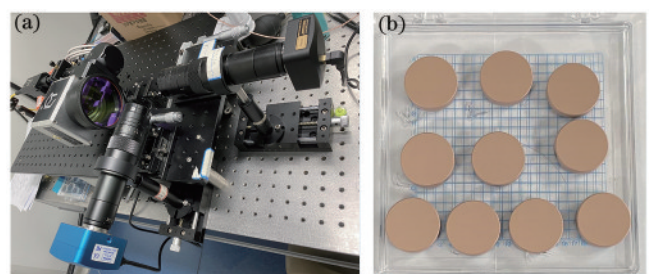


图 2 实验(a)装置和(b)样品的实物图

Fig. 2 Physical pictures of experimental (a) setup and (b) samples

图 2(b)所示。接收基底为同样规格的石英玻璃,实验前用超声波清洗 5 min,去除表面的粉尘等杂物。

### 2.3 实验方案与结果表征方法

为确定脉宽对于激光驱动微滴转移行为的影响规律,设计了如表 1 所示的实验方案。其中激光光斑尺寸由失焦方式决定,实验时将铜膜设置在离焦 100  $\mu$ m 处(利用单脉冲激光烧蚀铜膜实验确定激光平均光斑约为 19  $\mu$ m),转印距离设置为 100  $\mu$ m。对转移薄膜所

表 1 LIFT 实验方案  
Table 1 Experimental scheme of LIFT

No.	Pulse duration /ns	Repetition rate /kHz	Spot size / $\mu\text{m}$	Single pulse energy / $\mu\text{J}$	Energy division
1	14	20	19	8.65–16.50	10
2	20	20	19	9.00–19.30	15
3	30	20	19	8.84–19.20	21
4	50	20	19	8.83–22.50	23
5	100	20	19	8.92–23.90	21

得微滴形貌的观察采用场发射型 SEM, 型号为 NOVA NAnoSEM 230, 高真空模式下分辨率为 1.0 nm。沉积微滴的体积测量使用材料型共聚焦显微镜, 型号为 VK-X3000。

### 3 结果分析与讨论

#### 3.1 微滴沉积工艺区间

本文利用激光能流密度作为评价激光辐照能量的标准, 激光能流密度  $F$  的计算公式为

$$F = \frac{E}{A}, \quad (1)$$

式中:  $E$  为激光单脉冲能量;  $A$  为激光光斑面积。不同脉宽的脉冲激光作用下供体薄膜烧蚀形态和接收基底沉积物形态如图 3 所示, 激光能流密度基本相同, 约为  $5350 \text{ mJ/cm}^2$ 。结果表明, 在 14、20 ns 脉宽下, 激光烧蚀薄膜形成直径约  $20 \mu\text{m}$  的微坑, 基底上可以观测到破碎液滴现象。在 30、50 ns 脉宽下, 可以在基底上观测到完整微滴, 其中 50 ns 激光辐照的供体薄膜熔融区域相对较小, 获得的微滴尺寸也较小。在 100 ns 脉宽下, 该激光能流密度低于铜膜的损伤阈值, 仅可观测到铜膜凸起, 基底上无法观测到微滴沉积。

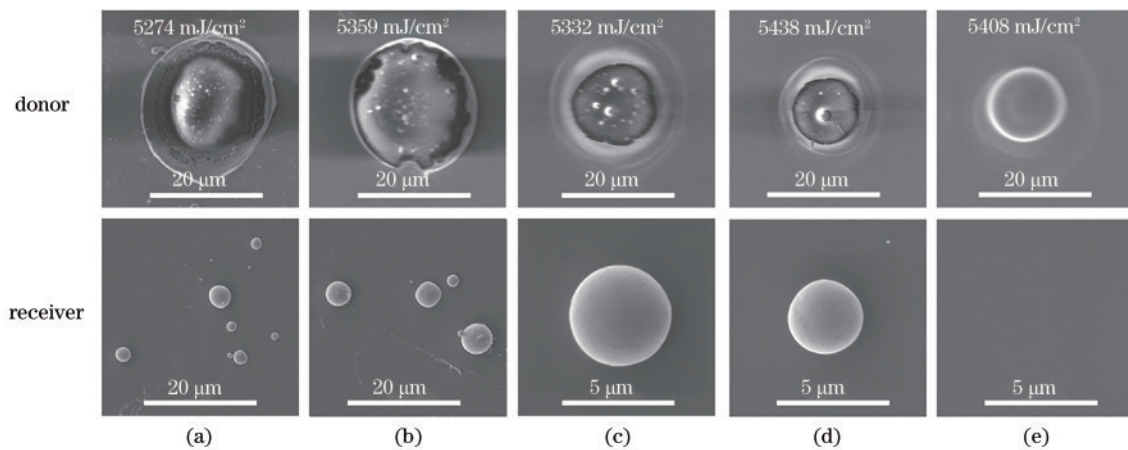


图 3 不同脉宽下供体铜薄膜与接收基底的 SEM 图像。(a) 14 ns; (b) 20 ns; (c) 30 ns; (d) 50 ns; (e) 100 ns

Fig. 3 SEM images of donor copper film and receiving substrate under different pulse durations. (a) 14 ns; (b) 20 ns; (c) 30 ns; (d) 50 ns; (e) 100 ns

根据沉积结果可以将 LIFT 工艺的沉积行为归纳为以下三个状态: 无微滴、完整微滴、破碎微滴。对于单一脉宽, 当能流密度较低时, 激光脉冲诱导的热弹性能低于薄膜表面结合能, 无法在基底上沉积微滴<sup>[12]</sup>; 随着激光能流密度不断增大, 超过 LIFT 的最低能流密度阈值  $F_a$ , 蒸气驱动部分熔化薄膜飞向基底, 薄膜飞行过程中在表面张力作用下收缩成一个完整微滴沉积到基底表面; 当激光能流密度突破阈值  $F_b$  时, 蒸气驱动作用非常剧烈, 熔融金属膜破裂并摆脱薄膜约束高速向基底飞行, 在基底上形成多个破碎微滴, 破碎微滴的喷射半径显著增大, 比单个微滴沉积范围扩大 3~5 倍。

由图 3 可知, 激光脉宽对转印行为有显著影响, 因

此根据沉积行为对不同脉宽下 LIFT 实验结果进行统计, 获得如图 4 所示的 LIFT 工艺区间。实验表明, 5 种脉宽激光均可以获得完整微滴。随着脉宽增加, 可以获得完整微滴的最低以及最高能流密度阈值  $F_a$  和  $F_b$  逐渐增高。不同脉宽对应的阈值变化较大, 无法使所有脉宽激光在同一能量下都获得完整微滴。通过对形成完整微滴能流密度边界点进行线性拟合可以获得图中所示的  $F_a$  和  $F_b$  曲线, 可以发现, 随着脉宽增加, 获得完整微滴的转印区间的宽度也在逐渐扩大, 其中短脉宽转印区间变化不明显, 长脉宽转印区间显著增大。

LIFT 工艺阈值边界的变化可以由薄膜的激光损伤机制进行解释, 当薄膜获得的热弹性力(即由于激光

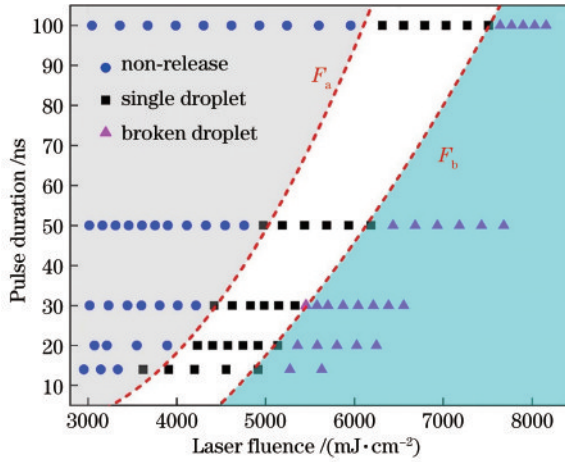


图 4 不同脉宽下的 LIFT 工艺区间

Fig. 4 Processing map of LIFT under different pulse durations

加热薄膜膨胀产生的向前的力)超过其材料的表面结合力则会驱动薄膜向接收基底转移<sup>[12]</sup>,利用数学公式表达为

$$F_{th} \leq \rho h^2 \alpha_f \Delta T / \tau_m^2, \quad (2)$$

式中: $F_{th}$ 为材料表面结合力阈值; $h$ 为转移材料的厚

度; $\rho$ 为材料密度; $\alpha_f$ 为热膨胀系数; $\Delta T$ 为薄膜温度升高; $\tau_m$ 为脉冲宽度。本文所转移的材料为 500 nm 铜膜, $\rho$ 、 $\alpha_f$ 、 $F_{th}$ 均为定值,随着脉宽不断变大,薄膜转移所需热弹性力对应的薄膜温升也不断增高。薄膜的温度升高主要由吸收的激光能量所决定,根据式(1),对于 500 nm 薄膜, $\rho h^2 \alpha_f$ 与材料表面结合力  $F_{th}$  均为定值,随着激光脉宽增加,为驱动薄膜形成微滴,需要提高辐照激光能量,因此对应的薄膜的转印阈值  $F_a$  也会随之增加。

### 3.2 沉积微滴尺寸形貌

脉宽对沉积微滴尺寸形貌的影响如图 5 所示,其中图 5(a)和 5(b)分别为 14 ns 和 50 ns 时不同激光能流密度下沉积微滴的 SEM 图像(基底旋转 55°)。对于 14 ns 短脉冲激光,当激光能流密度较低时微滴呈球形;能流密度达到 4199 mJ/cm<sup>2</sup>时,可观测到多个液滴堆叠现象;继续扩大能流密度到 4916 mJ/cm<sup>2</sup>时,微滴形状也从球形变为半球形,与基底接触面积也随之变大。而对于 50 ns 脉宽激光,沉积微滴呈椭球状,且微滴尺寸随着能流密度的增加而不断增大,与基底的接触面积也不断扩大。

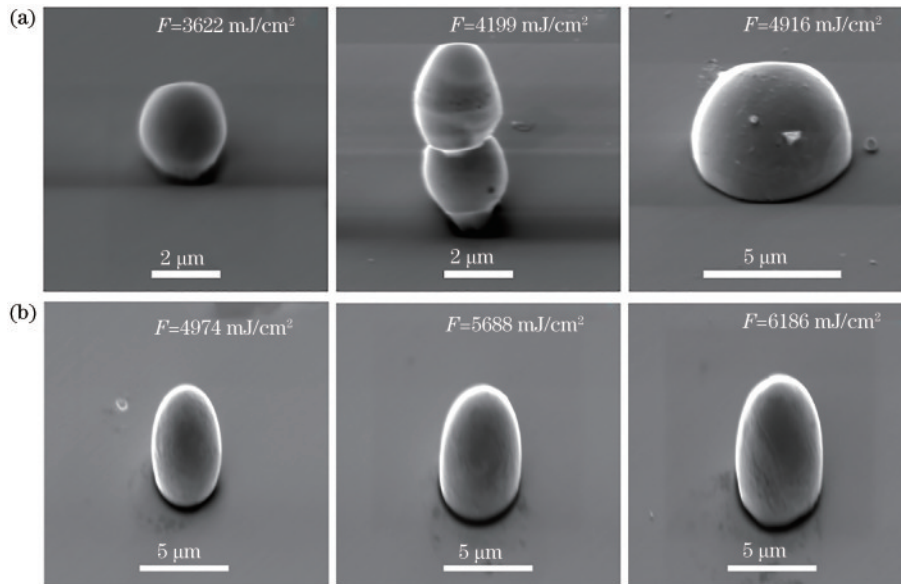


图 5 14 ns 和 50 ns 脉宽时不同激光能流密度下沉积微滴的 SEM 图像(基底旋转 55°)。(a) 14 ns; (b) 50 ns

Fig. 5 SEM images of deposition microdroplets under different laser energy flux densities at pulse durations of 14 ns and 50 ns (sample rotated 55°). (a) 14 ns; (b) 50 ns

上述现象产生的原因是在短脉宽时,激光持续时间相对较短,热扩散范围较小,当激光与薄膜相互作用时,其能量吸收严格限制在极小范围内,并在极短时间内将薄膜加热熔化,形成尺寸相对较小的喷射微滴沉积到基底上,如图 6(a)所示。随着能流密度增大,薄膜吸收能量增高,喷射形成高动能细长射流,在惯性力作用下射流断裂,同时接收基底导热性良好,形成多个微滴堆叠,如图 6(b)所示。继续增加能量,烧蚀薄膜获得更多的动能,多个微滴也融合形成一个微滴,如

图 6(c)所示。而脉宽较长时薄膜升温过程相对比较柔和,喷射速度相对较低,在飞行过程中收缩形成一个微滴后沉积到接触基底上,因此不容易从沉积微滴中观测到多微滴堆叠现象。液滴撞击壁面存在先铺展后反弹现象,而对于金属微滴,其凝固时间与初始温度有关,长脉宽下获得微滴的温度更高,微滴撞击接收基底反弹后凝固,从而形成椭球型微滴。进行微结构制备时,为提高打印分辨率,应选取可稳定沉积单个微滴的激光参数,尽可能保证沉积微滴的一致性以及稳定性。

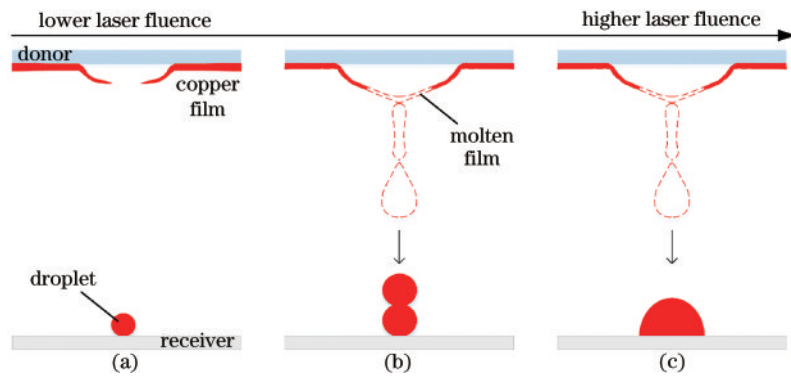


图 6 短脉宽下沉积微滴形貌形成原因示意图。(a)单个微滴；(b)微滴堆叠；(c)微滴融合

Fig. 6 Schematic of formation of deposition microdroplet morphology under short pulse duration. (a) Single droplet; (b) stacked droplet; (c) fused droplet

### 3.3 脉宽对材料转移比率的影响

对 LIFT 工艺的烧蚀铜膜进行观测后发现,烧蚀薄膜上存在熔融残留,并未完全转移,因此为确定脉宽对于材料转移比率的影响,需对微滴产生过程的材料转移比率  $R_{MT}$  进行计算,计算公式为

$$R_{MT} = \frac{V_2}{V_1}, \quad (3)$$

式中:  $V_1$  为烧蚀铜膜体积;  $V_2$  为沉积微滴体积。对获

得的完整单个微滴工艺区间内的实验结果进行分析处理,基于不同激光参数获得的烧蚀铜膜 SEM 图像,烧蚀铜膜体积  $V_1$  可以近似用下式进行计算:

$$V_1 = \pi d^2 h / 4, \quad (4)$$

式中:  $h$  为铜膜膜厚,为 500 nm;  $d$  为铜膜烧蚀直径,由铜膜烧蚀坑 SEM 图圆拟合获得,如图 7(a)所示。沉积微滴体积  $V_2$  利用材料型共聚焦显微镜测量获得,图 7(b)和 7(c)分别为沉积微滴的 SEM 图和共聚焦显微镜图。

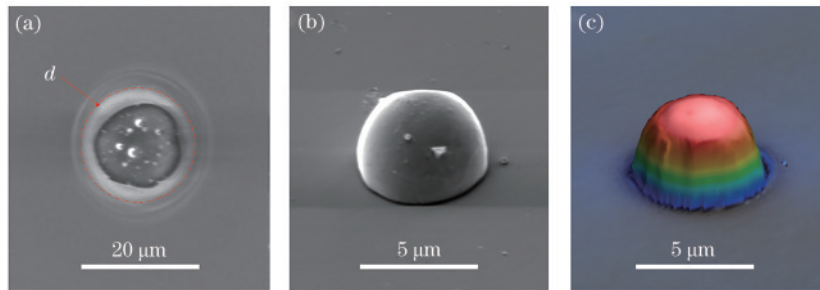


图 7 20 ns、4916 mJ/cm<sup>2</sup>激光烧蚀铜膜以及沉积微滴形貌。(a)铜膜的 SEM 图像；(b)沉积微滴的 SEM 图像；(c)沉积微滴的共聚焦显微镜图像

Fig. 7 Images of copper film and deposition microdroplet ablated by 20 ns, 4916 mJ/cm<sup>2</sup> laser. (a) SEM image of copper film; (b) SEM image of deposition microdroplet; (c) confocal microscopy image of deposition microdroplet

图 8 为统计获得的不同脉宽下的材料转移比率规律。发现在单个微滴产生区间内,对于单一脉冲宽度,随着激光能流密度增大,材料转移比率从 0.2 逐渐增大,最大转移比率可以达到 0.6。同时分析不同脉宽下激光驱动微滴沉积的转移比率可以发现,材料转移比率对脉宽变化并不敏感,不同脉宽下材料转移比率区间变化不大。在实际微结构堆积时,为提高材料利用率,在给定激光脉宽后应在工艺区间内尽量选取高激光能流密度。

### 3.4 微滴阵列打印

基于本文对多脉宽激光驱动微滴转移行为的分析,微结构打印时应尽可能选择长脉宽并提高激光能量。本文选取激光脉宽为 50 ns,调节能流密度为 6185 mJ/cm<sup>2</sup>,利用振镜线扫描的方式实现了大规模微滴阵列的制备。如图 9(a)所示,沉积点间距为 50 µm,

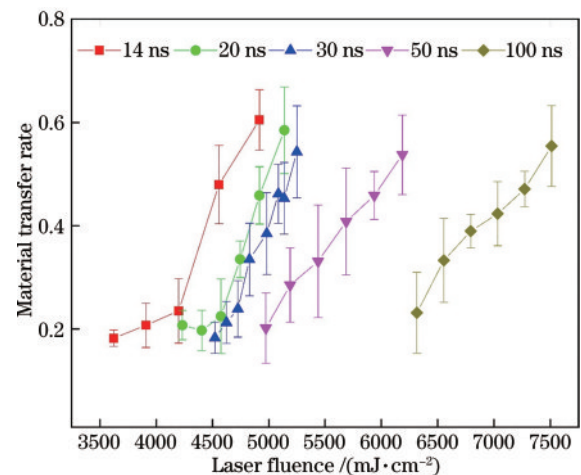


图 8 不同脉宽下的材料转移比率

Fig. 8 Material transfer rates under different pulse durations

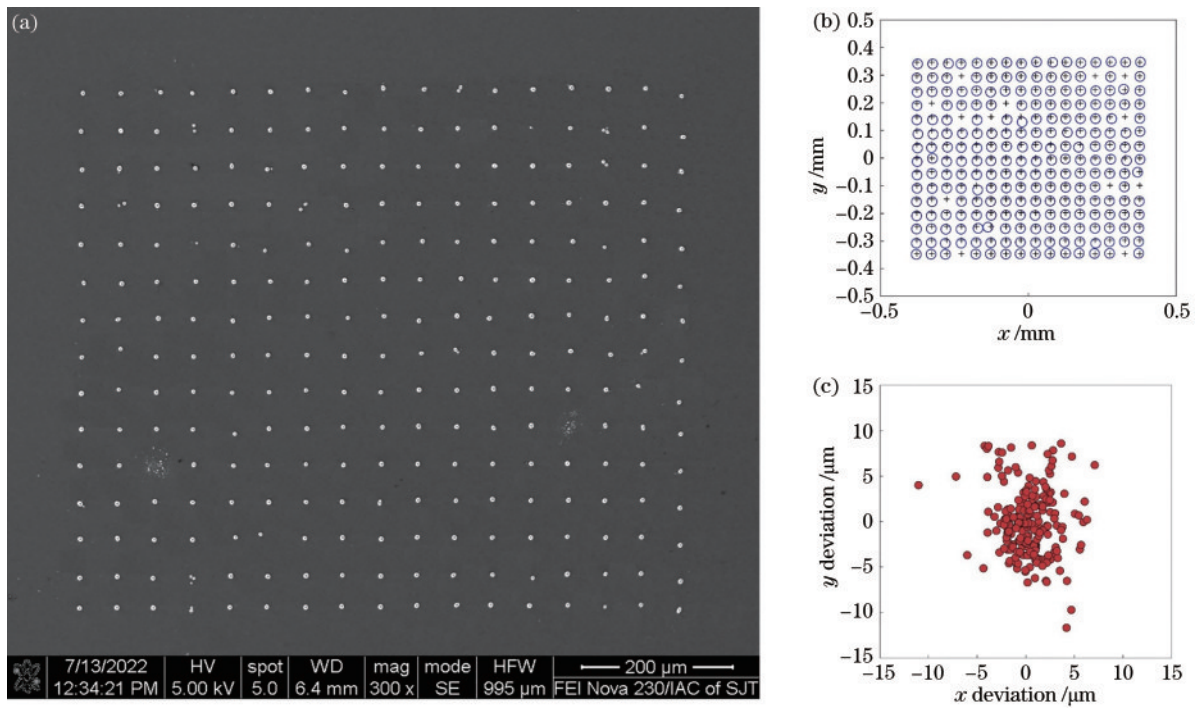


图 9 大规模微滴阵列。(a)微滴阵列的 SEM 图像;(b)沉积微滴与烧蚀坑网格匹配图;(c)  $\Delta x$  与  $\Delta y$  落点偏差

Fig. 9 Large-scale microdroplet array. (a) SEM image of microdroplet array; (b) mesh matching diagram of deposition microdroplet and ablative pit; (c) landing errors of  $\Delta x$  and  $\Delta y$

单个沉积微滴直径约为  $5 \mu\text{m}$ 。同时为评估微滴落点的准确性,对阵列的落点偏差进行统计,通过将沉积微滴阵列的坐标与供体薄膜的烧蚀坑网格匹配确定每个沉积微滴的落点二维偏差  $\Delta x$  与  $\Delta y$ ,如图 9(b)所示,通过筛选分析获得阵列中 237 个沉积微滴的  $\Delta x$  与  $\Delta y$  分布如图 9(c)所示,大部分沉积微滴的落点偏差在  $\pm 5 \mu\text{m}$  以内,整体落点良好,能够实现复杂微结构的精确打印。

## 4 结 论

针对激光脉宽的影响,开展了 5 种不同脉宽激光辐照  $500 \text{ nm}$  铜薄膜的打印实验,分析了脉冲宽度对激光驱动微滴转移行为的影响,得出以下结论:

1) 随着脉宽的不断增大,获得完整微滴的 LIFT 工艺最低及最高能流密度阈值逐渐增高。

2) 脉宽对沉积微滴形貌有显著影响,短脉宽时可以观测到小尺寸球形微滴、微滴堆叠以及融合现象,长脉宽时沉积微滴呈椭球形。

3) 随着激光能流密度的不断提高,LIFT 工艺的材料转移比率从 0.2 不断增大到 0.6,同时材料转移比率对脉宽不敏感。

4) 通过调节激光参数实现了微滴阵列打印,沉积微滴落点精度可以控制在  $\pm 5 \mu\text{m}$  以内,为实现更复杂的微结构打印提供了实验基础。

此外,LIFT 工艺区间中不同脉宽下的最高能流密度阈值  $F_0$  的影响机制以及膜厚对区间的影响原因

尚不明确,仍需进一步研究。

## 参 考 文 献

- [1] Bohandy J, Kim B F, Adrian F J. Metal deposition from a supported metal film using an excimer laser[J]. Journal of Applied Physics, 1986, 60(4): 1538-1539.
- [2] Kuznetsov A I, Kiyan R, Chichkov B N. Laser fabrication of 2D and 3D metal nanoparticle structures and arrays[J]. Optics Express, 2010, 18(20): 21198-21203.
- [3] 黄亚军,蔡文莱,陈英怀,等.纳秒激光诱导铜箔喷射机制的研究[J].红外与激光工程,2019,48(2):0206003. Huang Y J, Cai W L, Chen Y H, et al. Study on ejection mechanism of copper film induced by nanosecond laser[J]. Infrared and Laser Engineering, 2019, 48(2): 0206003.
- [4] Luo J, Pohl R, Qi L, et al. Printing functional 3D microdevices by laser-induced forward transfer[J]. Small, 2017, 13(9): 1602553.
- [5] 张天杰,刘海涛,郭宁,等.基于激光烧蚀微推进技术的 GAP 靶带致密性研究[J].爆破器材,2018,47(2):6-11. Zhang T J, Liu H T, Guo N, et al. Density of GAP target zone based on laser ablation micro propulsion technology[J]. Explosive Materials, 2018, 47(2): 6-11.
- [6] 罗乐乐,窦志国,李南雷.激光烧蚀微推力器聚合物靶材的烧蚀特性[J].中国激光,2018,45(7):0702002. Luo L L, Dou Z G, Li N L. Ablation characteristics of polymer target for laser ablation micro-thruster[J]. Chinese Journal of Lasers, 2018, 45(7): 0702002.
- [7] 杨丽.飞秒激光微精细加工—微量物质转移研究[D].天

- 津: 天津大学, 2007.
- Yang L. Studies on depositing of metal film by femtosecond laser induce forward transfer[D]. Tianjin: Tianjin University, 2007.
- [8] Zergioti I, Mailis S, Vainos N A, et al. Microdeposition of metal and oxide structures using ultrashort laser pulses [J]. *Applied Physics A*, 1998, 66(5): 579-582.
- [9] Visser C W, Pohl R, Sun C, et al. Toward 3D printing of pure metals by laser-induced forward transfer[J]. *Advanced Materials*, 2015, 27(27): 4087-4092.
- [10] Thomas J, Bernard R, Thomas J T, et al. Femtosecond laser induced forward transfer of indium thin films[J]. *Laser and Particle Beams*, 2014, 32(1): 55-61.
- [11] Sametoglu V, Sauer V T K, Tsui Y Y. Production of 70-nm Cr dots by laser-induced forward transfer[J]. *Optics Express*, 2013, 21(15): 18525-18531.
- [12] Veiko V P, Shakhno E A, Smirnov V N, et al. Laser-induced film deposition by LIFT: physical mechanisms and applications[J]. *Laser and Particle Beams*, 2006, 24(2): 203-209.