

CHẾ TẠO VI LỖ TRÊN MÀNG MỎNG AU/PD NHỜ SỬ DỤNG XUNG LASER FEMTO-GIÂY

Nguyễn Thị Huyền Trang^{1,2,3,*}, Đoàn Hoài Sơn¹, Cao Thành Lê¹

¹*Trường Đại học Hà Tĩnh, Hà Tĩnh, Việt Nam*

²*Viện Vật lý Lebedev, Viện Hàn lâm Khoa học Nga 119991 Moscow, Liên Bang Nga*

³*Trường Đại học Vật lý kỹ thuật Moscow, 141700 Dolgoprudny, Liên Bang Nga*

*Email: trang.nguyenthihuyen@htu.edu.vn

Đến Tòa soạn: 25/05/2014; Chấp nhận đăng: 27/2/2015

TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, chúng tôi tiến hành chế tạo lỗ có kích thước micro trên màng kim loại vàng pha tạp paladin Au/Pd (80/20%) nhờ vào công nghệ tan mòn (ablation) kim loại sử dụng xung laser femto giây. Các vi lỗ nhận được có đường kính $2 \div 3 \mu\text{m}$, chu kỳ của lưới vi lỗ (khoảng cách giữa tâm của hai vi lỗ liền kề) $\approx 5 \mu\text{m}$. Vi lỗ có thể được sử dụng như là nguồn sáng có kích thước micromet dùng trong giao thoa điểm nhiễu xạ hoặc các bộ lọc không gian.

Từ khóa: công nghệ nano, hạt nano, kính hiển vi, lỗ micro; màng mỏng kim loại, xung laser femto-giây.

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Thuật ngữ chế tạo micro được sử dụng để miêu tả việc sản xuất các cấu trúc vật liệu có kích thước micro. Sự tan mòn sử dụng laser (*laser ablation*) với xung laser ngắn (ns đến fs) là một trong những kỹ thuật chế tạo micro phổ biến được dùng để khoan vi lỗ, cắt và tạo mẫu ở kim loại và chất điện môi có độ chính xác cao [1]. Qua các nghiên cứu khác đã chứng minh được rằng việc sử dụng xung laser femto giây để chế tạo vi lỗ hầu như không gây ra các hư hỏng về nhiệt do sự hội tụ năng lượng nhanh chóng [2]. Ngược lại, việc sử dụng các xung nano giây và thậm chí pico giây để chế tạo đã gây ra các hư hỏng về nhiệt và giảm chất lượng của sự tan mòn (*ablation*) [2, 5, 6]. Sự tan mòn (*ablation*) có thể được thực hiện bởi xung laser năng lượng cao nhưng gây hư hỏng nhiệt đáng kể do dung lượng ánh sáng tập trung cao làm tan mòn đến cả lớp chất nền được phủ màng kim loại. Khi tác dụng, xung laser từ ngoại ngắn năng lượng thấp nó hầu như không làm ảnh hưởng đến chất nền, lúc đó bề mặt kim loại sẽ bị nóng lên, sau đó nóng chảy và nếu năng lượng đủ lớn sẽ làm bay hơi vật liệu. Thông thường, các vật liệu nóng chảy được trục xuất từ phía trước bằng khí áp lực, mà cũng có thể làm như một vật liệu loại bỏ tăng cường thông qua các phản ứng hóa học [4]. Mặt khác, sự tạo ra lỗ gần một ranh giới cố định có thể gây hư hỏng đến các chất nền [7, 8].

Trong nghiên cứu này, chúng tôi trình bày kết quả của việc chế tạo vi lỗ trên màng mỏng nano Au/Pd (80/20%), với chất nền CaF₂ bằng phương pháp tan mòn (*ablation*) khi sử dụng xung laser femto giây năng lượng thấp. Có hai ưu điểm chính của việc sử dụng xung laser loại này so với hệ thống xung laser năng lượng cao là chi phí thấp và chùm Gauss có chất lượng cao. Ngoài ra, sự tan mòn (*ablation*) do có bản chất vật lý phụ thuộc vào xung laser tác dụng lên bề mặt kim loại, trong khi ở xung laser bình thường có thể là ion hóa mạnh hoặc hấp thụ nhiều photon, thì ở xung laser tử ngoại ngắn hấp thụ trực tiếp chiếm ưu thế. Các vi lỗ có thể được dùng như nguồn sáng micromet sử dụng trong giao thoa điểm nhiễu xạ hoặc các bộ lọc không gian; ngoài ra, độ phân giải kích cỡ micro mẫu có thể được thực hiện.

2. MÔ TẢ THÍ NGHIỆM

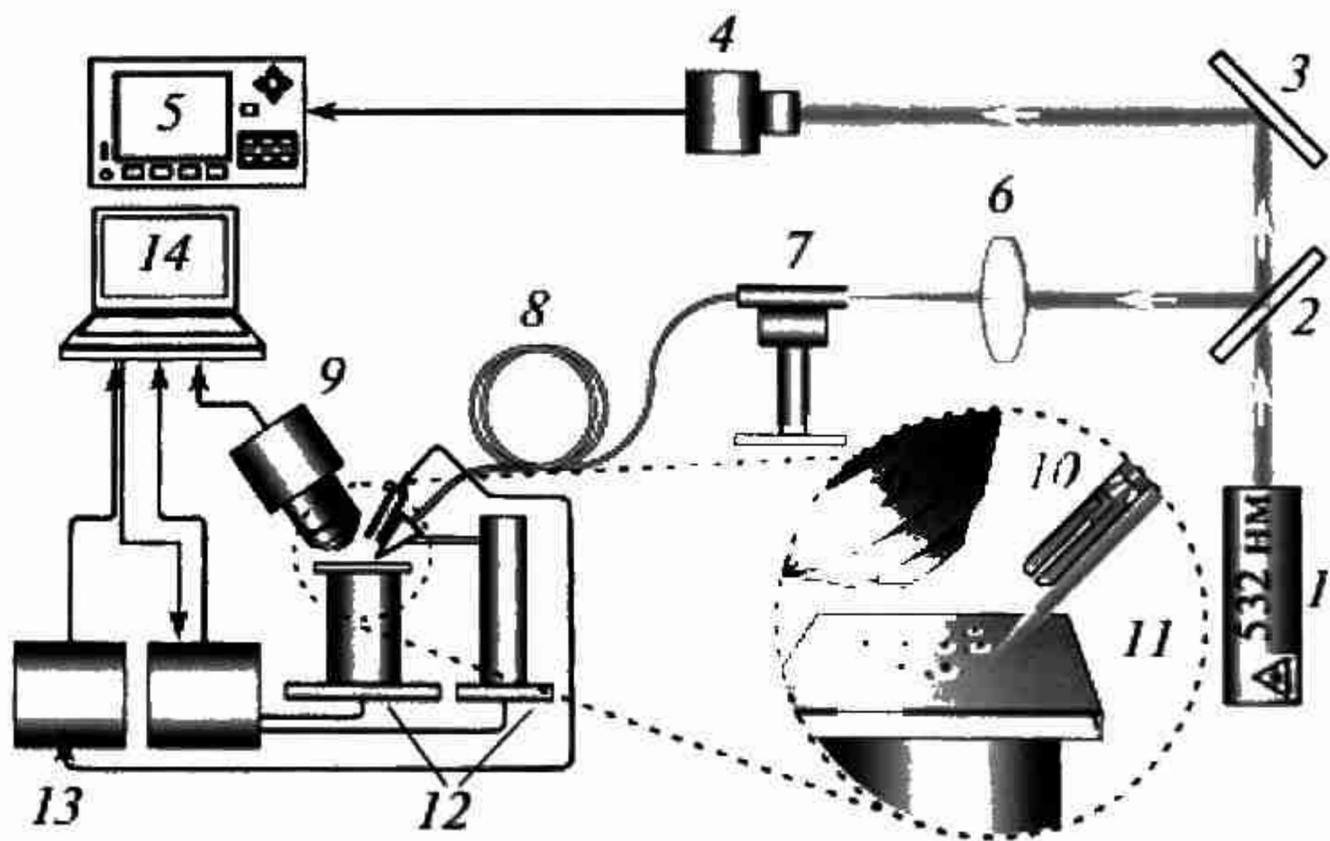
Đầu tiên chúng tôi sử dụng phương pháp phún xạ nhờ vào thiết bị SC7620, Quorum Technologies để phủ lên mặt phẳng chất nền CaF₂ một lớp Au/Pd (80/20%) trong khoảng thời gian 90 s trong môi trường Ar. Độ dày lớp phủ thu được là $h \approx 60$ nm.

Sơ đồ thực nghiệm để chế tạo vi lỗ trên màng Au/Pd được biểu diễn trên Hình 1. Nguồn vào sử dụng xung laser femto-giây từ Nd:YAG – laser (Quantel Ultra) được làm việc trong chế độ phát hòa ba bậc hai. Hội tụ xung laser được thực hiện nhờ vào bộ van tiết lưu, được tạo thành bởi ống dẫn sáng sợi cáp quang mode đơn (single-mode optical fiber) với góc hội tụ 12° và mũi đầu dò đường kính 250 nm. Tham số hình học của đầu dò và phương pháp chế tạo nó được miêu tả cụ thể trong nghiên cứu [8]. Sử dụng đầu dò này để lọc không gian và hội tụ bức xạ Nd:YAG – laser tại mũi đầu dò có thể tạo ra vết hội tụ trên bề mặt kim loại với bán kính trên một nửa chiều cao $R_{opt,1/2} \approx 0,3$ μ m và độ sâu hội tụ 200 nm nếu không sử dụng bất kỳ một thiết bị quang học nào hỗ trợ. Khoảng cách giữa đầu dò và mặt phẳng màng Au/Pd khoảng 50 nm và không thay đổi trong suốt quá trình thực nghiệm nhờ vào hệ thống liên kết ngược với âm thoa gồm áp điện. Đầu dò đặt dưới góc 60° so với pháp tuyến của mẫu được điều chỉnh nhờ vào thiết bị định vị cơ học ba tọa độ Ox, Oy, Oz có độ chính xác cao với bước dịch chuyển nhỏ nhất của mỗi trục bằng 150 nm. Cấu hình này cho phép kiểm tra sự dịch chuyển đầu dò và quan sát quá trình tạo ra cấu trúc vi micro (submicro) trực tiếp trên mặt phẳng màng Au/Pd nhờ vào kính hiển vi quang học độ phân giải cao (Xirox KH7700, x7000). Tất cả cấu trúc micro và nano đều được tạo ra bởi một xung laser duy nhất trong những điều kiện thường. Kết quả thu được trên mặt phẳng màng được quan sát bằng phương pháp quét lực nguyên tử (ACM, NanoDST Pacific Nanotechnology) và kính hiển vi quét điện tử (SEM, Hitachi S3400).

Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng xung đầu vào từ nguồn thứ nhất Nd:YAG – laser có bước sóng $\lambda = 1030$ nm và nguồn thứ hai có bước sóng $\lambda = 515$ nm, điều chỉnh thời gian khoảng femto giây $\tau_{las} \approx 200$ fs và năng lượng xung lớn nhất là 4 μ J. Sự phân bố không gian của bức xạ ở đầu ra từ sợi cáp quang tương ứng với mode TEM₀₀. Các chùm laser chế độ TEM₀₀ được hội tụ trên bề mặt kim loại Au/Pd trong môi trường không khí với một vật kính hiển vi DIN tiêu sắc ngâm dầu 100 x (NA = 0,25) để tạo ra kích thước điểm nhỏ nhất (với bán kính $R_{1/e} \approx 1,5$ μ m). Đối với chùm tia Gauss trong không khí (chiết suất $n_0 \approx 1$) bán kính vết hội tụ mức 1/e được tính theo công thức (không có quang sai sắc cầu) [9]

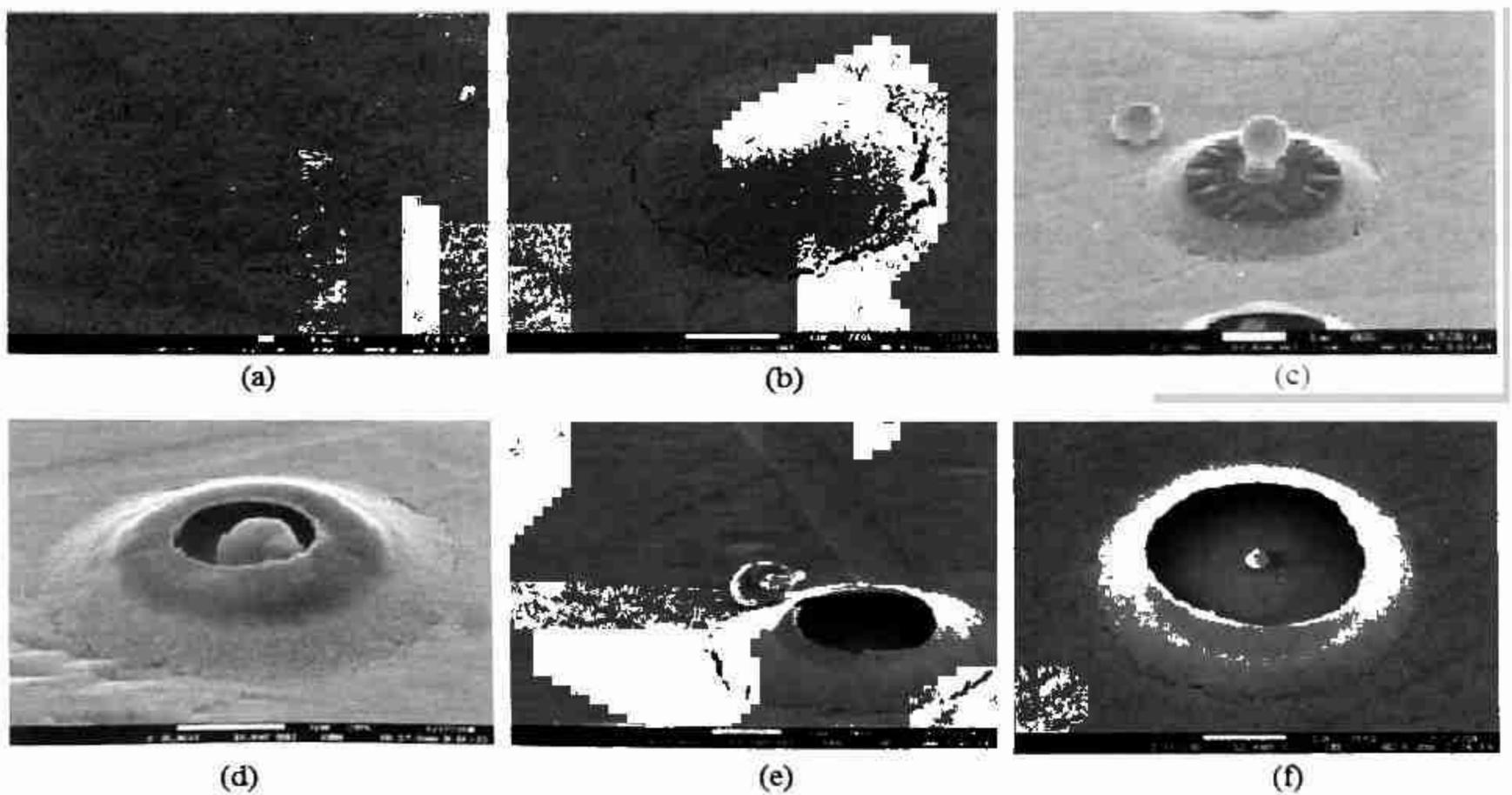
$$R_{opt} = \frac{\lambda_{las} \sqrt{n_0^2 - NA^2}}{\pi NA}$$

Để quan sát kết quả thu được chúng tôi sử dụng kính hiển vi quét điện tử (SEM) JEOL 7001F với môđun máy quang phổ Ronghen năng lượng phân tán (EDRS).



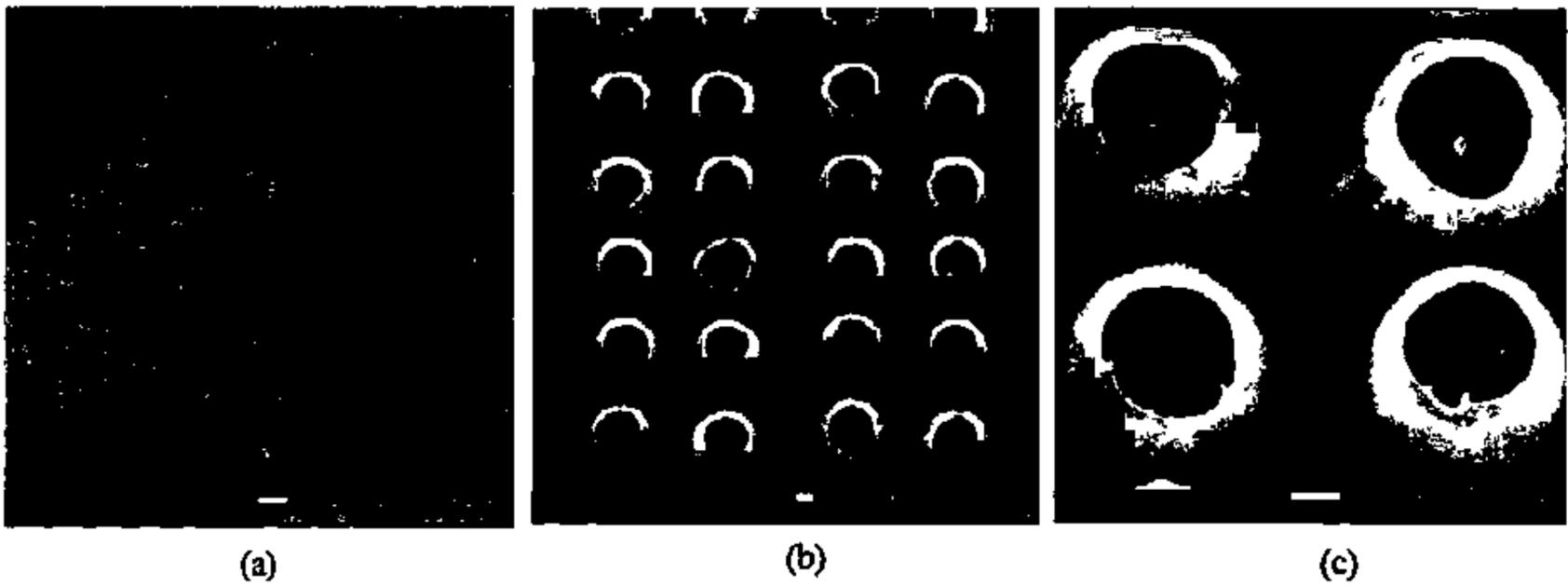
Hình 1. Sơ đồ thực nghiệm chế tạo lỗ micro 1- Nguồn laser; 2- Bộ tách ánh sáng; 3 – Gương; 4-Thiết bị thu nhận ánh sáng; 5 – Máy đo năng lượng; 6 – Thấu kính hội tụ ; 7- Thiết bị đưa tia bức xạ vào sợi cáp quang; 8 – Ống dẫn sáng sợi cáp quang; 9 – Kính hiển vi quang học; 10 – Âm thoa gốm áp điện; 11 – Bộ van tiết lưu ; 12 – Định vị cơ học; 13 – Điều khiển; 14 – Máy tính.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

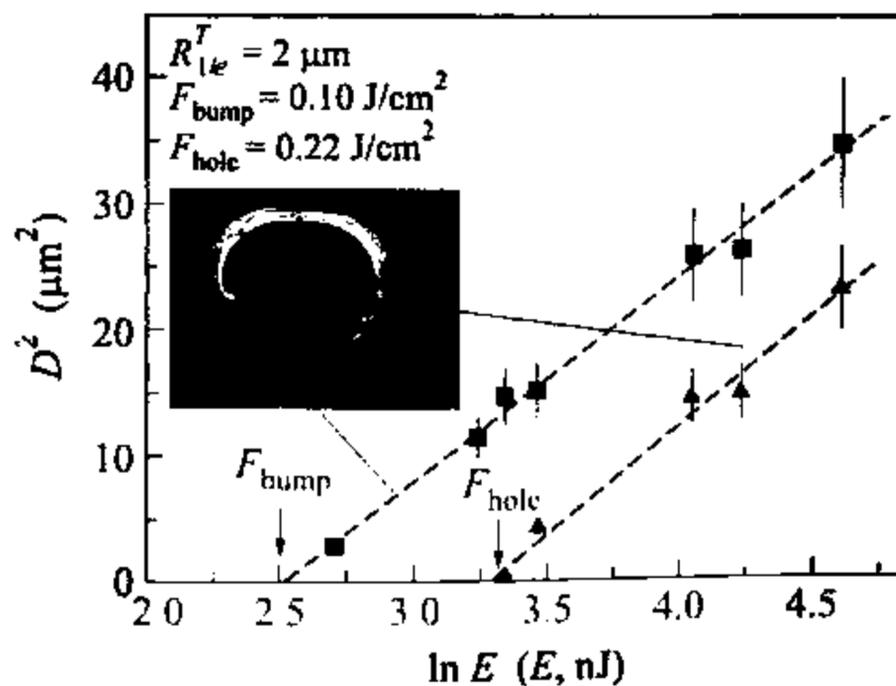


Hình 2. Ảnh SEM biểu diễn quá trình tạo ra lỗ micro trên màng kim loại Au/Pd (80/20%) trên chất nền CaF_2 với mật độ năng lượng $F \approx 0.11$ (a), 0.13 (b), 0.18 (c) J/cm^2 dưới góc nhìn 42° ; 0.23 (d) và 0.25 (e và f) J/cm^2 dưới góc nhìn 55° .

Tác dụng xung laser cực ngắn bước sóng $\lambda = 515 \text{ nm}$ lên bề mặt màng Au/Pd với năng lượng khác nhau dẫn đến quá trình làm tan mòn bề mặt kim loại vàng tạo thành vi lỗ có kích thước với đường kính $d \approx 2 \div 3 \text{ }\mu\text{m}$ và chu kỳ (khoảng cách từ tâm của hai vi lỗ liền kề nhau) $p \approx 5 \text{ }\mu\text{m}$. Với mật độ năng lượng $F \approx 0,11 \text{ J/cm}^2$, bề mặt kim loại Au/Pd hóa rắn và tái kết tinh hạt nano tinh thể kim loại (Hình 2a). Khi mật độ năng lượng $F \approx 0,13 \text{ J/cm}^2$, xung không chỉ làm tan chảy màng mà còn bóc nó ra dưới dạng mặt lồi micro (Hình 2b). Tăng mật độ năng lượng lên nữa, chúng ta quan sát thấy sự gia tăng kích thước mặt lồi micro và xuất hiện đỉnh nano. Khi $F > 0,18 \text{ J/cm}^2$ trong phần trung tâm của nó, ta có thể nhìn thấy màng mỏng màu đen, và đồng thời hình thành đỉnh vi micro và hạt nano xuất hiện trên đỉnh của nó (Hình 2c). Sự bay ra của hạt nano với dòng dẫn đến sự hình thành lỗ trên đỉnh của miền lồi rỗng ruột, xảy ra với mật độ năng lượng $F \approx 0,23 \text{ J/cm}^2$ (Hình 2d). Khi mật độ năng lượng $F \approx 0,25 \text{ J/cm}^2$ hạt nano cùng với đỉnh nano rời khỏi khu vực lân cận của khu bức xạ (Hình 2e). Tăng mật độ năng lượng lên đến $F \approx 0,27 \text{ J/cm}^2$ chúng tôi quan sát được sự tăng đơn điệu đường kính của lỗ (Hình 2f).



Hình 3. Ảnh SEM của màng mỏng Au/Pd (80/20 %) dày $h \approx 110 \text{ nm}$. a) Màng vi lỗ có đường kính và chu kỳ tương ứng $d \approx 2 \div 3 \text{ }\mu\text{m}$, $p \approx 5 \text{ }\mu\text{m}$; b) Hình ảnh phóng to của hình a; c) Một màng gồm 4 lỗ micro được phóng to.



Hình 4. Sự phụ thuộc đường kính của miền lồi micro (hình vuông) và lỗ (hình tam giác) vào $\ln E$ của năng lượng. Trên hình cho thấy ảnh SEM của bề mặt màng vàng được chiếu xạ bởi một xung laser từ ngoại ngắn với mật độ năng lượng $F \approx 0,27 \text{ J/cm}^2$.

Hình 3 cho thấy một mạng các vi lỗ được chế tạo theo sơ đồ sản xuất ở Hình 1 và quá trình tạo ra lỗ như ở Hình 2. Trong một số trường hợp hạt nano không trôi hẳn ra bề mặt kim loại vàng mà vẫn nằm trong trung tâm của lỗ (Hình 2f), còn trong những điều kiện khác nó lại rời khỏi lỗ cùng với đỉnh nano và phân bố trên bề mặt màng mỏng kim loại (Hình 3b và 3c).

Sự phụ thuộc năng lượng đo được vào đường kính của miền lõi micro và lỗ trên bề mặt màng vàng chứng minh đặc trưng ngưỡng với giá trị ngưỡng bằng $F_{\text{bump}} \approx 0,10 \pm 0,02 \text{ J/cm}^2$ và $F_{\text{hole}} \approx 0,22 \pm 0,02 \text{ J/cm}^2$ tương ứng, và với bán kính đặc trưng phân bố năng lượng đầu vào $R_{1/R}^T \approx 2,0 \pm 0,1 \mu\text{m}$ (Hình 4). Bán kính $R_{1/R}^T$ lớn hơn bán kính hội tụ quang học $R_{1/e} 0,5 \mu\text{m}$ vì có sự ảnh hưởng của nhiệt trong khoảng thời gian nano giây τ khi hình thành miền lõi micro và lỗ ($\sqrt{4\chi\tau} \sim 1 \mu\text{m}$ với $\tau \sim 10^{-8} \text{ s}$ [10, 12] và hệ số dẫn nhiệt của vàng ở nhiệt độ cao χ ($T = 1000^{\circ}\text{K}$) $\approx 1.1 \text{ cm}^2/\text{s}$ [11]).

4. KẾT LUẬN

Trong nghiên cứu này chúng tôi đã chỉ ra một trong những phương pháp tối ưu hiện nay để tạo ra lỗ có kích thước micro trên màng mỏng Au/Pd (80/20%) có độ dày nano trên bề mặt chất nền CaF_2 bằng cách sử dụng xung laser femto giây bước sóng $\lambda = 515 \text{ nm}$. Lỗ được tạo ra gần như hoàn hảo với đường kính $2 \div 3 \mu\text{m}$ và chu kỳ khoảng $5 \mu\text{m}$. Ngoài ra, trong quá trình tiến hành thực nghiệm chúng tôi phát hiện ra phương pháp này còn tạo ra các hạt nano vàng nằm trên đỉnh nano, với mật độ năng lượng $F \approx 0,27 \text{ J/cm}^2$ hạt nano có thể trôi ra khỏi vùng bức xạ và phân bố trên bề mặt kim loại hoặc phân bố ngay trong lỗ. Lỗ được tạo ra trên chất nền CaF_2 với sự hấp thụ nhỏ nên chất lượng lỗ tạo ra có chất lượng tốt và độ hư hỏng thấp. Các vi lỗ có thể được sử dụng như nguồn sáng micromet hoặc cho các bộ lọc không gian hoặc in ảnh kích thước micro bằng phương pháp quang khắc trên kim loại.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Chichkov B. N., Momma C., Nolte S., Alvensleben F., and Tünnermann A. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids, Appl. Phys., A Mater. Sci. Process. 63 (2) (1996) 109–115.
2. Webb C. E. and Jones J. D., Handbook of: Laser Technology and Applications IOP Publishing, England (2004).
3. Unger, C. Koch J., Overmeyer L., and Chichkov B. N. – Time-resolved studies of femtosecond-laser induced melt dynamics, Opt. Express 20 (2012) 24864 (in Russian).
4. Stewart R. and Li L.- Enclosed laser ablation of 20 nm aluminium films using a continuous wave diode laser: II Theoretical heating considerations and proposed mechanisms, Opt. Laser Technol. 36 (5) (2004) 377–382.
5. Nolte S., Momma C., Jacobs H., Tünnermann A., Chichkov B. N., Wellegehausen B., and Welling H. - Ablation of metals by ultrashort laser pulses J. Opt. Soc. Am. B 14 (10) 2716–2722 (1997).
6. Kautek W., Krüger J., Lenzner M., Sartania S., Spielmann C., and Krausz F. - Laser ablation of dielectrics with pulse durations between 20 fs and 3 ps, Appl. Phys. Lett. 69 (21) (1996) 3146–3148.

7. Philipp A. and Lauterborn W. - Cavitation erosion by single laser-produced bubbles, *J. Fluid Mech.* **361** (1998) 75–116.
8. Tomita Y. and Shima A. - Mechanisms of impulsive pressure generation and damage pit formation by bubble collapse, *J. Fluid Mech.* **169** (1) (1986) 535–564.
9. Grigoriev I. S., Meilikhov E. Z., Physical quantities, Energoatomizdat, M. (1991).
10. Kulchin Y. N., Vitrik O. B., Kuchmizhak A. A., Savchuk A. G., Neomnyaschy A. A., Danilov P. A., Zayarniy D. A., Ionin A. A., Kudryashov S. I., Makarov S. V., Rudenko A. A., Yurovski V. I., Samokhin A. A. – Nanospikes and nanoholes fabrication in thin metal film by focused nanosecond laser pulses, - *JETP* **146** (2014) 1 (in Russian).
11. Kulchin Y. N., Vitrik O. B., Kuchmizhak A. A. et al. – Through nanohole formation in thin metallic film by single nanosecond laser pulses using optical dielectric apertureless probe *Opt. Lett.* **38** (2013), 1452 (in Russian).
12. Emelyanov V. I., Zayarniy D. A., Ionin A. A., Kiseleva I. V., Kudryashov S. I., Makarov S. V., Rudenko A. A., Nguyen T. H. T. – Nanoscale Hydrodynamic Instability in a Molten Thin Gold Film Induced by Femtosecond Laser Ablation *JETP Letters* **99** (2014) pp. 518–522 (in Russian).

ABSTRACT

MICRO – HOLE FABRICATION IN THIN FILM AU/PD USING FEMTOSECOND LASER PULSES

Nguyen Thi Huyen Trang^{1,2,3,*}, Doan Hoai Son¹, Cao Thanh Le¹

¹*Ha Tinh University, Ha Tinh, Viet Nam*

²*Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, Leninskii pr. 53, Moscow, 119991 Russia Moscow*

³*Institute of Physics and Technology (State University), Institutskii per. 9, Dolgoprudnyi, Moscow region, 141700 Russia*

*Email: trang.nguyenthihuyen@htu.edu.vn

In this work, we performed micro – holes fabrication in the methallic thin film Au/Pd (80/20%) by ablation using ultrashort femtosecond laser pulses. Micro – hole diameter $d \approx 2 \div 3 \mu\text{m}$ and period $p \approx 5 \mu\text{m}$ are produced. The micro-holes can be employed as micrometer light sources for use in point diffraction interferometers or spatial filters.

Keywords: nano-technology, nano-particle, microscope, micro-hole, thin metallic film, femtosecond laser pulse.