## 04,07 Динамика ионизации в лазерной плазме на газовой мишени при низких давлениях

## © Р.А. Демидов, С.Г. Калмыков, А.М. Можаров, М.В. Петренко, М.Э. Сасин

Санкт-Петербургский государственный политехнический университет Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург E-mail: Serguei.Kalmykov@mail.ioffe.ru

В источниках коротковолнового излучения на Хе лазерной плазме коэффициент конверсии энергии лазера в излучение EUV диапазона (CE) оказывается существенно ниже теоретических ожиданий. Сделанные оценки показывают, что одной из основных причин этого может быть длительный период начальной ионизации до момента появления высокозарядных ионов, способных испускать коротковолновые фотоны. Плазма при этом остается низкоионизованной и слабо поглощает лазерное излучение. Также выполнены измерения поглощения света лазера, которые позволяют получить сведения, подтверждающие упомянутые оценки. В качестве метода ускорения процесса ионизации и, соответственно, повышения CE предлагается предыонизация газовой мишени импульсом ультрафиолетового (UV) эксимерного лазера.

Приводимые в литературе оценки коэффициента конверсии энергии излучения лазера в узкополосное EUV излучение в источниках света для фотолитографии показывают, что для равновесных плазм он может достигать величины, близкой к 1.5% [1,2], для неравновесной же плазмы можно ожидать и еще бо́льших величин. Однако эксперименты демонстрируют существенно меньшие значения, в большинстве случаев они по порядку величины составляют десятые доли процента или даже еще меньше (см., например, [1,3–5]). В данной работе исследуется одна из самых очевидных причин этого: длительный период начальной

1

ионизации газовой мишени до того момента, когда в ней появляются ионы с высоким зарядом, способные излучать в EUV диапазоне. При этом низкоионизованная плазма слабо поглощает лазерное излучение; лишь малая его доля тратится на первичную ионизацию, а основная часть, не поглощаясь, расходуется впустую.

В соответствии с теорией возникновения и развития лазерной плазмы, разработанной еще в 1960–1970-е годы [6], появление первых свободных электронов в газовой мишени обусловлено многофотонной ионизацией газа в фокусе лазерного луча. При тех параметрах лазерного импульса, которые использовались в данной работе (длина волны —  $\lambda = 1.06$  nm, что предполагает 11-фотонную ионизацию ксенона; интенсивность излучения в фокусе —  $I_{las} \approx 0.5 \, \text{TW/cm}^2$ ; длительность —  $\tau_{las} \approx 30 \,\mathrm{ns}$ ), в области лазерного фокуса могут возникнуть лишь единичные фотоэлектроны. В дальнейшем происходит лавинная ионизация электронным ударом, причем свободные электроны набирают достаточную для этого энергию в электромагнитном поле лазерного излучения за счет соударений с атомами (пока происходит ионизация нейтрального газа) или ионами. Для того чтобы произвести однократную ионизацию всего наличного газа мишени при плотности, скажем,  $n = 10^{18} \, {\rm cm}^{-3}$  ( $P = 28 \, {\rm Torr}$ ), требуется последовательное рождение  $\log_2 10^{18} = 60$  поколений электронов.

В рассматриваемой здесь простейшей модели первой, однократной ионизации не учитываются ни потери энергии электрона (кроме ионизационных), ни потери заряженных частиц. Тогда время, проходящее между рождением двух последовательных поколений, т.е. время накопления энергии ионизации электроном составляет  $\tau_i = \tau_{ea}(U_i/\Delta E_e)$ , где  $\tau_{ea} = (n_a \langle \sigma_{ea} V_e \rangle)^{-1}$  — время между столкновениями электрона с атомами,  $U_i$  — первый потенциал ионизации (для Xe  $U_i = 12.1 \text{ eV}$ ),  $\Delta E_e = 2\langle E_{e,osc} \rangle = (4\pi e^2 I_{las})/(m_e c \omega^2)$  — энергия, приобретаемая электроном при одном столкновении. В приведенных выражениях:  $n_a$  — концентрация атомов газа,  $\langle \sigma_{ea} V_{ea} \rangle$  — произведение сечения рассеяния электронов на атомах Xe [7] на тепловую скорость электронов, усредненное по диапазону электронных энергий  $1 \text{ eV} < E_e < U_i$ ,  $\langle E_{e,osc} \rangle$  — средняя колебательная энергия электрона в поле волны,  $I_{las}$  и  $\omega$  — интенсивность и круговая частота лазерного излучения, e и  $m_e$  — заряд и масса электрона, c — скорость света. Окончательно

$$\tau_i = \frac{U_i m_e c \omega^2}{4\pi e^2 I_{las}} \frac{1}{n_a \langle \sigma_{ea} V_e \rangle}.$$
(1)

При указанных выше условиях опыта  $\tau_i$  составляет более 0.1 ns, а полное время, затрачиваемое на первую ионизацию газа — около 8 ns (учитывается, что средняя интенсивность лазерного излучения за первые примерно 10 ns ниже, чем средняя интенсивность полного импульса), т.е. существенную часть полной длительности лазерного импульса.

Справедливость полученной оценки была проверена в опыте, в котором исследовалась эволюция во времени поглощения лазерного излучения в плазме, создаваемой Nd: YAG лазером с вышеуказанными параметрами в стационарном Хе с плотностями порядка 10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup>, близкими к тем, которые ожидаются в импульсной струйной мишени. Экспериментальная установка описана в [8,9]. На рис. 1 показаны осциллограммы интенсивности прошедшего через рабочую камеру лазерного излучения.

Интегрирование осциллограмм позволяет получить сведения о долях лазерной энергии, поглощенной за определенные промежутки времени. Оказывается, что при атомарной (ионной) концентрации, например,  $n = 0.85 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (давление заполняющего камеру газа P = 24 Torr) из той энергии, которая падает на мишень за первую половину импульса — от начала до максимума (и которая составляет примерно 40% от его полной энергии) — поглощается 6.6%. Во второй же половине импульса — от максимума до его конца — поглощается 18.3% энергии, падающей на плазму за этот промежуток времени, т. е. поглощение в начале импульса примерно в 3 раза слабее, чем во второй его половине. При концентрации  $n = 1.17 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (P = 33 Torr) эти цифры возрастают и составляют 20.3 и 39.7% соответственно, т. е. и в этом случае поглощение в начальной стадии существенно слабее, чем в развитой плазме.

Показанные на рис. 1 осциллограммы прошедшей через плазму лазерной энергии позволяют получить усредненные по объему плазмы мгновенные значения коэффициента поглощения  $\mu(t) =$  $= \{-\ln[I_{tr}(t)/I_0(t)]\}/x(t)$ , где  $I_0(t)$  и  $I_{tr}(t)$  — соответственно интенсивность падающего на плазму и прошедшего через нее лазерного излучения. Необходимые для определения  $\mu(t)$  значения длины лазерной искры x(t) были найдены интерполяцией между мгновенными значениями длины искры, измеренными с помощью streak-камеры [9] для давления Xe, близких к давлениям в описываемом опыте (рис. 2). Выведенные таким образом экспериментальные значения  $\mu(t)$  показаны на рис. 3.



**Рис. 1.** Осциллограммы излучения лазера, прошедшего через: I — вакуум в рабочей камере, когда плазмы нет; 2 — плазму при атомарной концентрации Xe  $n = 0.85 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (P = 24 Torr); 3 — плазму при концентрации  $n = 1.17 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (P = 33 Torr); все три осциллограммы нормированы на значение интенсивности в максимуме импульса, прошедшего через вакуум; 4 и 5 — мгновенные значения поглощенной доли интенсивности при  $n = 0.85 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> и  $n = 1.17 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>, соответственно.

Величина коэффициента поглощения электромагнитной волны в плазме зависит от ее параметров и для не слишком плотных плазм, таких, что  $4\pi n_e e^2/m_e \omega^2 \ll 1$  и  $v_{ei}/\omega \ll 1$ , описывается выражением (см., например, в [10])

$$\mu = \frac{4\pi e^2}{m_e c} \frac{n_e v_{ei}}{\omega} = \frac{4\pi e^2}{m_e c} \frac{n_e n_i \langle \sigma_{ei} V_e \rangle}{\omega^2} = \frac{16\pi^2 e^6}{(3m_e)^{3/2} c} L_c \frac{Z_{eff}^3 n_i^2}{\omega^2 (k_B T_e)^{3/2}}.$$
 (2)

Здесь  $n_i$  — концентрация ионов плазмы, равная концентрации атомов газа,  $n_e = Z_{eff} n_i$  — электронная концентрация,  $Z_{eff}$  — эффективный (усредненный по зарядовым состояниям) ионный заряд,  $v_{ei}$  — частота соударений электрона с ионами,  $\sigma_{ei}$  — сечение кулоновских электрон-ионных соударений,  $T_e$  — усредненная температура электро-

0.5

0.4

0.3

0.2

0.1

Spark length, cm





плазменного ооразования. I и 2 - 3кспериментальные данные [9], полученные из фотографий, сделанных streak-камерой с длительностью экспозиции 1.8 ns, для давлений Xe P = 18 Torr и P = 66 Torr, соответственно. Кривые I и 2 проведены через экспериментальные точки с учетом последовательного введения все более плотных оптических фильтров при фотографировании все более поздних фаз развития искры. На кривой 2 для t = 16 ns показаны две точки, демонстрирующие видимое изменение длины искры, происходящее при однократной замене светофильтра. Кривые 3 и 4 — интерполяции для  $n = 0.85 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (P = 24 Torr) и  $n = 1.17 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (P = 33 Torr), соответственно.

нов,  $V_e$  — их тепловая скорость,  $\langle \ldots \rangle$  — усреднение по ансамблю скоростей,  $L_C = 7$  — кулоновский логарифм,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $\omega$  — круговая частота лазерного излучения, e и  $m_e$  — соответственно, заряд и масса электрона, c — скорость света. Поскольку для опытов со стационарной газовой мишенью концентрация атомов/ионов всегда известна, из экспериментально определенных величин  $\mu$  можно получить значения комбинации параметров плазмы  $Z_{eff}/\sqrt{T_e}$ .

Имея какую-либо априорную информацию об электронной температуре, из экспериментальных величин  $\mu$  можно вывести значение эф-



**Рис. 3.** *1* и 2 — выведенное из экспериментальных данных изменение во времени коэффициента поглощения  $\mu$  для  $n = 0.85 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (P = 24 Torr) и  $n = 1.17 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> (P = 33 Torr), соответственно; 3 — гипотетический ход во времени электронной температуры  $T_e$ ; 4 — эволюция во времени эффективного ионного заряда плазмы  $Z_{eff}$  для  $n = 0.85 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>, вычисленная по экспериментальным данным (кривая 1) и предполагаемому изменению температуры (кривая 3).

фективного ионного заряда плазмы. Так, если  $T_e = 25 \text{ eV}$  (в ряде работ, описываемых и цитируемых в [1], для ксеноновой плазмы указывается типичный диапазон температур  $T_e = 30-40 \text{ eV}$ , в работе [8] из экспериментальных данных для водородной плазмы получено  $T_e = 25-30 \text{ eV}$ ), то в районе максимума лазерного импульса, где данные для  $I_{tr}(t)/I_0(t)$  и, соответственно, для  $\mu(t)$  наиболее достоверны, величины ионного заряда составят  $Z_{eff} = 6.2$  при  $n = 0.85 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  и  $Z_{eff} = 7.1$  при  $n = 1.17 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Поскольку в энергобалансе лазерной плазмы доминирующими потерями энергии являются радиационные и предполагая, что плазма излучает как черное тело, можно считать в грубом прибли-

жении, что  $T_e(t) \sim \sqrt[4]{I_{abs}(t)}$ ,  $(I_{abs}(t)$  — интенсивность поглощаемого плазмой лазерного излучения, рис. 1). На рис. 3 кривая 3 описывает предполагаемое поведение  $T_e(t)$ , а кривая 4 — соответствующую ей зависимость  $Z_{eff}(t)$ .

Благодаря сильной зависимости  $\mu$  от  $Z_{eff}$  значения  $Z_{eff}$ , выведенные из усредненных по длине плазмы величин  $\mu$ , будут весьма близки к максимальным. Так, если  $Z_{eff}$  варьирует по параболическому закону от нуля на краях искры до максимума в ее середине, то выведенная из  $\mu$ усредненная величина  $Z_{eff}$  составляет 0.77 от максимальной, т.е. при указанных условиях опыта и предполагаемых значениях  $T_e = 25-30 \text{ eV}$ максимальные значения  $Z_{eff}$  для середины лазерной искры в районе максимума лазерного импульса лежат в диапазоне 6.5–9.5. Это значит, что излучающий в диапазоне EUV ион Xe<sup>+10</sup> появляется поздно, только уже вблизи максимума лазерного импульса и при  $n < 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  не является доминирующим.

Отметим в заключение, что поскольку  $Z_{eff}$  пропорциональна кубическому корню из  $\mu$  и квадратному из  $T_e$ , погрешности экспериментальных данных и некорректность в предположениях о величинах  $T_e$  относительно слабо влияют на полученные значения  $Z_{eff}$ .

Из приведенных результатов видно, что замедленная начальная ионизация Хе инфракрасным (IR) излучением Nd: YAG лазера приводит к существенному укорочению времени EUV высвета и увеличению бесполезного расхода энергии лазера в первой половине импульса. Устранить эти недостатки можно было бы с помощью эффективной предыонизации газа мишени. Хорошим способом предыонизации является создание плазмы излучением эксимерного KrF-лазера с длиной волны  $\lambda = 248$  nm [10]. Поскольку энергия первого возбужденного уровня Хе практически совпадает с суммарной энергией двух квантов этого лазера, ионизация происходит в двухфотонном процессе, вероятность которого настолько высока, что весь газ мишени может быть полностью однократно ионизован за несколько первых наносекунд импульса такого лазера. При последующем облучении получившейся плазменной мишени импульсом Nd: YAG лазера можно было бы примерно в 1.5 раза повысить поглощение лазерной энергии и в несколько раз удлинить EUV высвет по сравнению со случаем, когда применяется только один IR-лазер.

Работа выполнена при поддержке МНТЦ, проект № 3857 и РФФИ, проект 10-02-00935-а.

## Список литературы

- [1] Bakshi V. EUV Sources for Lithography, SPIE Press, Bellingham, WA, USA, 2006.
- [2] Калмыков С.Г. // Письма в ЖТФ. 2009. Т. 35. В. 21. С. 97.
- [3] Schriever G. et al. // J. Vac. Sci. Technol. B 17 (1999). № 5. p. 2058.
- [4] Diefendorff K. Extreme Lithography (6/19/2000). < http://www.mpronline.com>.
- [5] Домрачева И.В. и др. // Письма в ЖТФ. 2007. Т. 33. В. 22. С. 9.
- [6] Райзер Ю.П. Лазерная искра и распространение разрядов. М.: Наука, 1974.
- [7] Райзер Ю.П. Физика газового разряда. 3-е изд. Долгопрудный, Моск. обл.: ИД Интеллект, 2009.
- [8] Калмыков С.Г. и др. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. В. 4. С. 23.
- [9] Калмыков С.Г. и др. // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37. В. 6. С. 63.
- [10] Калмыков С.Г. и др. // Письма в ЖТФ. 2008. Т. 34. В. 17. С. 65.