

02;04;07

Роль многофотонной ионизации в образовании и нагреве лазерной плазмы

© С.Г. Калмыков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
E-mail: sergei.kalmykov@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 27 декабря 2007 г.

Подчеркивается недостаточность только столкновительных механизмов для объяснения начальной стадии развития лазерной плазмы на газовой мишени и необходимость привлечения механизма многофотонной ионизации. На основе простейших предпосылок делается численная нижняя оценка скорости последнего процесса, доказывающая его высокую эффективность для коротковолновых лазеров с умеренной интенсивностью излучения. Предлагается совместное применение коротковолнового и длинноволнового лазеров для повышения эффективности лазерной плазмы в качестве источника излучения в коротковолновом ультрафиолетовом диапазоне.

PACS: 52.38.Dx, 52.50.Jm

Сохраняющаяся до настоящего времени тенденция дальнейшей миниатюризации элементов интегральных схем требует применения в фотолитографическом процессе излучения с длиной волны в диапазоне 10–15 nm. Одним из наиболее привлекательных источников такого излучения считается микроплазма, возбуждаемая импульсом лазерного излучения на газовой мишени из тяжелого инертного газа. Перспектива промышленного применения фотолитографа с таким источником предъявляет высокие требования к коэффициенту преобразования энергии лазерного импульса в энергию излучения. Достигнутое в различных экспериментах значение этого коэффициента для обсуждаемого типа источника на порядок не достигает теоретического предела для квазиравновесных плазм. Таким образом, оптимизация такого источника, т.е. разработка способов управления параметрами плазмы сохраняет высокую актуальность.

Общепринятая на настоящий момент точка зрения, объясняющая возникновение и нагрев лазерной плазмы в газах („лазерный пробой“, „лазерная искра“), базируется на рассмотрении одного лишь столкновительного механизма нагрева электронов в электромагнитном поле лазерного излучения и последующей ионизации электронным ударом (см., например, [1,2]).

Действительно, в выражении для диэлектрической проницаемости столкновительной плазмы (см., например, [3]) существует мнимая компонента, откуда следует, что в амплитуде волны есть затухающий с расстоянием множитель, т.е. интенсивность I распространяющейся в плазме электромагнитной волны подчиняется закону Бугера–Ламбера $I = I_0 \exp\{-\mu x\}$, где

$$\mu = \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{v_{ei}}{c} = \frac{n_e}{n_{cr}} \frac{v_{ei}}{c}. \quad (1)$$

Здесь ω_p — круговая электронная плазменная частота, параметр плазмы, определяемый концентрацией электронов в ней n_e ; $\omega_p^2 = 4\pi n_e e^2 / m_e$ (m_e и e — масса и заряд электрона, c — скорость света); n_{cr} — критическая концентрация электронов для волны с частотой ω такая, что при $n_e \geq n_{cr}$ (т.е. $\omega \leq \omega_p$) распространение волн в плазме невозможно, $n_{cr} = m_e \omega^2 / 4\pi e^2$; v_{ei} — частота упругих столкновений электрона с тяжелыми частицами, атомами и ионами, $v_{ei} = n_i \langle \sigma_{ei} V_e \rangle$ (n_i — концентрация тяжелых частиц, σ_{ei} — сечение столкновения, V_e — скорость электрона, $\langle \dots \rangle$ — усреднение по ансамблю скоростей). Формула (1) выведена в приближении, где $\omega_p^2 / \omega^2 \ll 1$ и $v_{ei} / \omega \ll 1$.

В плазме с относительно слабым поглощением $\mu x \ll 1$ приходящая на один ион поглощенная и перешедшая в тепловую энергию электронов мощность

$$\frac{I_0 - I}{n_i x} \approx \frac{I_0 \mu x}{n_i x} = \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{v_{ei}}{n_i c} I_0 = \frac{4\pi e^2}{m_e c} \frac{n_e \langle \sigma_{ei} V_e \rangle}{\omega^2} I_0. \quad (2)$$

Из (1), (2) видно, что при доминировании столкновительных механизмов длинноволновые лазеры более эффективны для нагрева плазмы по сравнению с коротковолновыми.

В качестве количественного примера (см. табл. 1) рассмотрим столкновительное поглощение для двух лазеров: KrF эксимерного с

Таблица 1. Столкновительное поглощение для двух лазеров

$\lambda, \mu\text{m}$	0.248	1
Коэффициент поглощения μ, cm^{-1}	0.215	3.44
Доля поглощенной энергии $(I_0 - I)/I_0$	0.0043	0.07
Поглощенная за импульс энергия на один ион, keV	34	540

$\lambda = 248 \text{ nm}$ и твердотельного с $\lambda = 1 \mu\text{m}$ в плазме с температурой электронов $T_e = 25 \text{ eV}$, концентрацией ионов $n_i = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ и средним ионным зарядом $Z = 10$ ($n_e = Zn_i$). Пусть длина плазменного образования $x = 200 \mu\text{m}$, длительность импульса — 25 ns , а плотность мощности в лазерном луче — 10^{12} W/cm^2 .

Сравним данные табл. 1 с энергией на один ион, минимально необходимой (т.е. без учета потерь) для ионизации и нагрева образовавшихся частиц, — $(E_i) + T_i + ZT_e \approx 1 \text{ keV}$ E_i — энергии ионизации, T_i — температура ионов в энергетических единицах в настоящем примере. Можно ожидать, что поглощаемой энергии будет достаточно для ионизации, поддержания температуры и компенсации потерь не только для лазера с $\lambda = 1 \mu\text{m}$, но и для более коротковолнового эксимерного лазера.

Однако так дело обстоит только для плазмы с высокими плотностью и величиной среднего ионного заряда. Теперь рассмотрим плазму с параметрами, характерными для начальной стадии ее эволюции. Пусть, например, $n_e = n_i = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, $Z = 1$ (такая плазма рассматривается в [1] в качестве „затравочной“ при лазерном пробое нейтрального газа), а плотность нейтральных атомов в газовой мишени, по-прежнему, 10^{18} cm^{-3} . В низкоионизованных плазмах следует учитывать столкновения электрона в основном с нейтральными атомами. Но сечение этих столкновений на 3–4 порядка ниже кулоновского сечения столкновений даже с однозарядными ($Z = 1$) ионами. Поэтому для рассматриваемой слабоионизованной плазмы поглощаемая мощность на частицу на 6–7 порядков ниже величин из табл. 1. Низкая поглощенная за импульс энергия на один ион $< 10 \text{ eV}$ означает, что даже в отсутствие потерь время, необходимое для первичной ионизации и нагрева плазмы, превышает длительность лазерного импульса. Таким образом, ни начальная

стадия эволюции плазмы, ни тем более ее возникновение в нейтральном газе не могут быть объяснены столкновительным механизмом поглощения лазерного излучения.

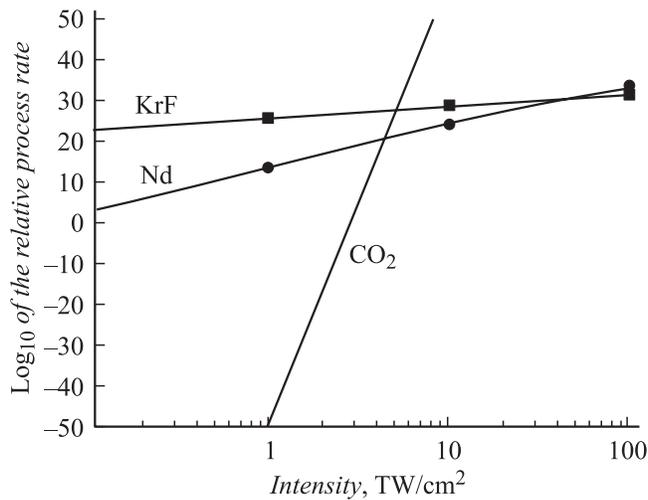
Однако большое количество экспериментов с лазерной плазмой на газовой мишени показывает, что при достаточно высокой интенсивности излучения — порядка 10^{12} W/cm² и выше — лазерная искра возникает при использовании лазеров с любыми длинами волн в диапазоне от ультрафиолетового до инфракрасного и с длительностью импульса вплоть до долей наносекунды. Более того, в одном из опытов с KrF эксимерным лазером (ФТИ, И.В. Домрачева и др., 2007) доля поглощенной плазмой энергии превышала 10% — существенно больше приведенной в табл. 1 расчетной величины.

Очевидно, что эффективно работает механизм прямой ионизации атомов лазерным излучением — фотоэффект. Однако, поскольку энергия фотонов даже у ультрафиолетовых лазеров ниже энергии первой ионизации (для Xe I, например, $E_i = 12$ eV), единственно возможной является многофотонная ионизация [4,5], чем и объясняется необходимость довольно высокой плотности энергии в лазерном луче для возникновения лазерной искры.

Скорость поглощения фотона атомом $\nu_{ph} = \sigma_{ph}I/(\hbar\omega)$, где σ_{ph} — сечение поглощения, а I — интенсивность излучения. Однако получившееся состояние с произвольной энергией ΔE запрещено с точки зрения квантового закона сохранения энергии, разрешающего лишь дискретный спектр состояний с квантованными энергиями. Поэтому многофотонный процесс следует рассматривать как ряд виртуальных переходов, происходящих с нарушением закона сохранения энергии. Вероятность поглощения атомом каждого следующего фотона — $P = \nu_{ph}\Delta t$, где $\Delta t \leq 2\pi\hbar/\Delta E$ — определяемое соотношением неопределенности время жизни виртуального состояния. Вероятность полного процесса есть произведение индивидуальных вероятностей, поэтому, принимая, например, $\Delta E \approx E_i/2$, получаем пригодное для численной оценки выражение

$$\nu_{multiph} = \left(\frac{4\pi\hbar}{E_i}\right)^{k-1} \left(\frac{I\sigma_{ph}}{\hbar\omega}\right)^k, \quad \text{где } k = \left[\frac{E_i}{\hbar\omega}\right]_{int} + 1 \quad (3)$$

есть число фотонов, необходимое для ионизации (от величины в прямоугольных скобках берется целая часть). В качестве σ_{ph} в дальнейшем используется сечение Крамерса фотоионизации из основного состояния



Зависимость скорости многофотонной ионизации от интенсивности излучения для трех типов лазеров: KrF — $\lambda = 248 \text{ nm}$, Nd — $\lambda = 1 \mu\text{m}$, CO₂ — $\lambda = 10 \mu\text{m}$.

для водородоподобных атомов [6]: $\sigma_{ph} = (64\alpha/3\sqrt{3})\pi a_0^2 = 7 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$, где $\alpha = 1/137$ — постоянная тонкой структуры, $a_0 = 0.5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$ — радиус Бора.

Полученная зависимость скорости многофотонной ионизации от интенсивности излучения для трех типов лазеров представлена на рисунке. В очень упрощенном выводе формулы (3) не наложено никаких ограничений на вероятность процесса. Если потребовать $P \leq 1$, тогда все кривые на рисунке будут стремиться к одной общей асимптоте $\nu_{multiph} \sim I$. Видно, что при умеренных интенсивностях излучения коротковолновые лазеры существенно более эффективны для ионизации плазмы, чем длинноволновые.

Важно отметить, что и описанное в [4] корректное решение квантово-механической задачи вырывания электрона из прямоугольной потенциальной ямы с глубиной $E_i \gg k\omega$ сильным световым полем (Л.В. Келдыш, 1964), и простейший вывод в настоящей работе не учитывают влияния резонансных энергетических уровней атома. Существует, однако, заметная вероятность совпадения с ними некоторых из виртуальных энергетических состояний. Как показано в [4], это

Таблица 2. Результаты расчетов с использованием выражения (3) для первой ионизации ксенона ($E_i = 12 \text{ eV}$) излучением KrF лазера ($\lambda = 248 \text{ nm}$, $\hbar\omega = 5 \text{ eV}$, $k = 3$)

$I, \text{ TW/cm}^2$	0.1	1	10
$\nu_{\text{multiph}}, \text{ s}^{-1}$	$3.3 \cdot 10^5$	$3.3 \cdot 10^8$	$3.3 \cdot 10^{11}$

обстоятельство существенно увеличивает вероятность многофотонной ионизации. Поэтому оценки с помощью (3) могут быть использованы только в качестве нижней границы для скоростей многофотонного процесса.

Результаты расчетов приведены в табл. 2. Видно, что при $I = 10^{12} \text{ W/cm}^2$ все атомы газовой мишени будут ионизованы на 3 ps.

Как и любой фотоэффект, многофотонная ионизация порождает свободные электроны с энергиями в диапазоне $E \leq (k\hbar\omega - E_i)$. В [5] представлены экспериментальные доказательства существования электронов с такими энергиями при многофотонной ионизации. Таким образом, нелинейный фотоэффект является не только эффективным механизмом ионизации газа, но и механизмом первичного нагрева получающейся плазмы.

Появляется желание объединить в эксперименте сильные стороны столкновительного и многофотонного механизмов поглощения лазерного излучения с тем, чтобы возможно более эффективным способом перевести его энергию в ионизацию и нагрев плазмы. Предлагается применение двух лазеров — сначала коротковолнового ультрафиолетового лазера с длительностью импульса в несколько наносекунд и умеренной интенсивностью порядка 1 TW/cm^2 , а в последующей стадии эволюции плазмы — длинноволнового инфракрасного лазера с длинным импульсом в несколько десятков наносекунд и относительно невысокой интенсивностью. Задача коротковолнового лазера — быстрая фотоионизация всех атомов газовой мишени и первичный нагрев плазмы. Длинноволновый же лазер производит эффективный нагрев плазмы не только в стадии с высокой плотностью заряженных частиц, но и в стадии расширения, когда плотность плазменного образования падает. Подбор оптимального временного сценария являются предметом экспериментального исследования.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, гранты № 06-08-01230-а и 07-08-12259.

Список литературы

- [1] Райзер Ю.П. // СОЖ. 1998. Т. 4. В. 1. С. 89.
- [2] Zakharov V.S., Novikov V.G., Zakharov S.V. Records of the 28th Conf. on Phenomena in Ionized Gases. Prague, July 2007 (publ. by Institute of Plasma Physics AS CR). P. 204.
- [3] Арцимович Л.А., Сагдеев Р.З. Физика плазмы для физиков. М., 1979.
- [4] Делоне Н.Б. // УФН. 1975. Т. 115. В. 3. С. 361.
- [5] Делоне Н.Б., Федоров М.В. // УФН. 1989. Т. 152. В. 2. С. 215.
- [6] Собельман И.И. Введение в теорию атомных спектров. М., 1963.