

01

## Эмиссионные спектры молекулярных газов N<sub>2</sub> и CO<sub>2</sub> в диапазоне 3–20 нм при импульсном лазерном возбуждении с использованием различных газовых струй в качестве мишеней

© А.Н. Нечай, А.А. Перекалов, Н.И. Чхало, Н.Н. Салащенко

Институт физики микроструктур РАН,  
603087 Нижний Новгород, Россия  
e-mail: nechay@ipm.sci-nnov.ru

Поступила в редакцию 28.01.2021 г.

В окончательной редакции 11.02.2021 г.

Принята к публикации 26.02.2021 г.

Рассматриваются результаты исследования эмиссионных спектров N<sub>2</sub> и CO<sub>2</sub> при возбуждении импульсным лазерным излучением. Использовался лазер Nd:YAG,  $\lambda = 1064$  нм,  $\tau = 5$  нс,  $E_{\text{pulse}} = 0.8$  Дж. Исследовался спектральный диапазон 3–20 нм. Для формирования атомарно-кластерного пучка использовались капилляр с  $d = 500$  мкм и сверхзвуковые конические сопла с  $d_{\text{cr}} = 145$  мкм,  $2\alpha = 12^\circ$ ,  $L = 5$  мм и  $d_{\text{cr}} = 450$  мкм,  $2\alpha = 11^\circ$ ,  $L = 5$  мм. Были получены эмиссионные спектры для различных газовых мишеней, проведена расшифровка полученных спектров и определены ионы, излучающие в данном спектральном диапазоне. Проведено сравнение интенсивностей линий при использовании различных систем формирования мишеней.

**Ключевые слова:** газовые струи, экстремальное ультрафиолетовое излучение, эмиссионные спектры, лазерная искра, рентгеновский спектрометр-монокроматор.

DOI: 10.21883/OS.2021.06.50987.1859-21

### Введение

Успехи в области отражающей многослойной оптики мягкого рентгеновского (МР) и экстремального ультрафиолетового (ЭУФ) диапазонов открыли широкие перспективы для исследований в данной области. Активные исследования с применением многослойной оптики проводились в области диагностики лабораторной и космической плазмы [1], а также в области МР и ЭУФ нанолитографии [2]. В настоящее время проводится разработка микроскопа, работающего в МР и ЭУФ диапазонах, предназначенного для изучения структуры нанообъектов различного происхождения [3]. Ключевым элементом для развития исследований в этих направлениях является точечный источник МР и ЭУФ излучения. Такие источники должны обладать подходящим для решения выбранной задачи спектром излучения, высокой интенсивностью излучения, стабильностью рабочих характеристик.

В лабораторных целях наибольшее применение нашли плазменные источники, в том числе такие, в которых плазма создается за счет импульсного лазерного излучения (ЛПИ-источники) [4–6]. В качестве мишеней для импульсного возбуждения используются газовые струи [4,7], твердотельные [8,9] и замороженные газовые мишени [10,11].

Ранее нами проводились исследования эмиссионных свойств инертных газов при использовании различных систем формирования газовых мишеней. В настоящей работе эти исследования продолжены, были проведены исследования эмиссионных свойств молекулярных газов:

азота и углекислоты. Данные мишени очень удобны в лабораторной практике в силу простоты работы с данными газами и сравнительно большой интенсивности получаемого МР и ЭУФ излучения. Особенно стоит отметить удачно расположенные линии O VI 15.01 нм и O V 15.15 нм. Эти две близко расположенные, хорошо разрешающиеся и яркие линии позволяют быстро проводить оценку параметров плазмы, получаемой при использовании различных систем формирования мишени и лазером.

### Исследовательская установка

Для исследований использовалась установка, подробно описанная в работе [12]. Работа установки осуществляется следующим образом. Исследуемый газ поступает в коническое сверхзвуковое сопло, при истечении из которого в вакуумный объем формируется газовая мишень. Откачка проводится криоконденсационным и криоадсорбционными насосами. Излучение лазера направляется на короткофокусную линзу, в фокусе которой происходит пробой и образование плазмы. Полихроматическое МР и ЭУФ излучение плазмы, проходя свободновисящий рентгеновский фильтр, направляется на входное зеркало спектрометра-монокроматора РСМ-500. Затем монохроматическое МР и ЭУФ излучение детектируется импульсным детектором.

Для возбуждения газовой струи использовался лазер NL300 Series Nd:YAG Laser со следующими параметрами: длина волны 1064 нм, энергия импульса лазера 0.8 Дж, длительность импульса 5.2 нс, частота до 10 Гц.

Лазерное излучение фокусируется на газовую мишень с помощью линзы с фокусным расстоянием 45 mm. Расчетный диаметр фокусного пятна составляет 66  $\mu\text{m}$ . Используется свободностоящий фильтр Mo/ZrSi<sub>2</sub> с толщинами слоев в бислое 1.5/2.5 nm, число бислоев 12. Также свободностоящий фильтр является и защитой от частиц различной природы, образующихся в процессе работы источников МР и ЭУФ излучения.

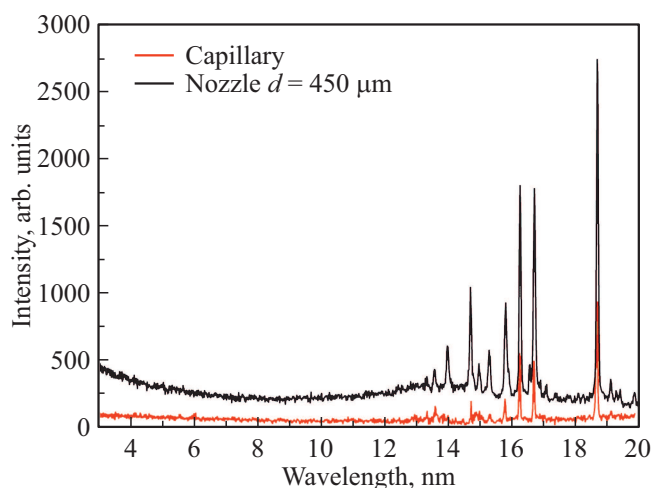
Спектральное разрешение прибора, измеренное на L-краях поглощения кремниевого и алюминиевого и K-крае бериллиевого свободностоящих фильтров, а также по полуширине нулевого порядка, составляло 0.04 nm. Для используемых решетки и зеркала исследуемый диапазон длин волн составлял 3–20 nm.

Для формирования газоструйных мишеней использовались следующие сопла: малое сверхзвуковое коническое сопло с  $d_{\text{cr}} = 145 \mu\text{m}$ ,  $2\alpha = 12^\circ$ ,  $L = 5 \text{ mm}$ , большое сверхзвуковое коническое сопло с  $d_{\text{cr}} = 450 \mu\text{m}$ ,  $2\alpha = 11^\circ$ ,  $L = 5 \text{ mm}$  и капилляр  $d = 500 \mu\text{m}$ .

Данные системы формирования газовой струи имеют следующие особенности. Конусное сверхзвуковое сопло малого критического сечения ( $d_{\text{cr}} = 145 \mu\text{m}$ ) формирует направленную сверхзвуковую струю газа. При подаче охлажденного газа либо газа под большим давлением формируется узконаправленный кластерный пучок с большой долей конденсата в нем. Данные сопла могут использоваться при различных температурах и давлениях подаваемого газа при наличии откачных систем приемлемой мощности ( $\sim 1000 \text{ l/s}$ ). Как правило, данные сопла используются для формирования кластерных пучков при постоянном режиме истечения газа и удобны при использовании лазерных систем с высокой частотой повторения импульсов.

Конусное сверхзвуковое сопло большого критического сечения ( $d_{\text{cr}} = 450 \mu\text{m}$ ) также формирует направленную сверхзвуковую струю газа. Но большое критическое сечение приводит к большим расходам газа, что при использовании откачных систем приемлемой мощности ( $\sim 1000 \text{ l/s}$ ) требует использования импульсного клапана. В свою очередь использование быстродействующих импульсных клапанов ограничивает используемый диапазон давлений, а особенно температур газов на входе в сопло, и не позволяет получить кластерные пучки с большим размером кластеров. Использование импульсных клапанов приводит к необходимости использования лазерных систем с невысокой ( $\sim 10 \text{ Hz}$ ) частотой повторения импульсов.

Капилляр большого сечения  $d = 500 \mu\text{m}$  характеризуется в лучшем случае звуковым режимом истечения газа и формирует газовое облако с практически изотропным разлетом газа во все стороны от среза капилляра. Используемый большой диаметр приводит к большим расходам газа, что при использовании откачных систем приемлемой мощности ( $\sim 1000 \text{ l/s}$ ) также требует использования импульсного клапана. Вместе с тем данная система формирования газоструйной мишени самая простая и надежная.



**Рис. 1.** Эмиссионные спектры азота, полученные при возбуждении струи газа, формируемой за счет капилляра и сверхзвукового конусного сопла с  $d_{\text{cr}} = 450 \mu\text{m}$ .

Газовые струи, формируемые в процессе истечения из конических сопел в вакуум, в общем случае имеют сложную пространственную структуру, определяемую параметрами газа на входе в сопло и используемыми геометрическими параметрами сопел. Особенно сложны задачи описания атомно-кластерных струй, формирующихся при истечении конденсирующегося газа из сверхзвуковых сопел в вакуум. Газодинамический расчет структуры подобной атомно-кластерной мишени весьма трудоемок и является отдельной задачей. В нашей работе на основании [4] принято, что концентрация частиц в газовых струях составляет  $10^{19} \text{ mol/cm}^3$ .

## Результаты

### Исследования газоструйных мишеней на основе азота

Азот — легкий молекулярный газ с малой реакционной способностью, в условиях опыта обладающий ярко выраженным линейчатым спектром в МР и ЭУФ спектральных диапазонах. Термодинамические свойства азота благоприятны для использования в качестве мишеней ЛПИ-источников МР и ЭУФ излучения. Ранее данный газ исследовался в работах [7,13].

На рис. 1 приведены эмиссионные спектры азота, полученные при использовании капилляра и конусного сопла с критическим сечением 450  $\mu\text{m}$  при следующих параметрах газа: давление газа на входе в сопло 3 bar, температура газа 300 K.

Исследованный спектральный диапазон составил 3–20 nm. Интенсивность излучения приведена в относительных единицах. Виден ряд интенсивных линий в диапазоне 13–20 nm, сформированных переходами на ионах N V. В диапазоне 3–13 nm эмиссионные

**Таблица 1.** Таблица эмиссионных линий азота

Длина волны, nm	Интенсивность, arb. units	Ион	Переход
5.55	45	N V	2s3s–2s4p
6.19	65	N V	2p3p–2p4d
13.12	65	N V	1s <sup>2</sup> 2s–1s <sup>2</sup> 10p
13.39	95	N V	1s <sup>2</sup> 2s–1s <sup>2</sup> 8p
13.64	130	N V	1s <sup>2</sup> 2s–1s <sup>2</sup> 7p
14.03	75	N V	1s <sup>2</sup> 2s–1s <sup>2</sup> 6p
14.74	165	N V	1s <sup>2</sup> 2s–1s <sup>2</sup> 5p
14.83	65	N V	1s <sup>2</sup> 2p–1s <sup>2</sup> 5p
15.02	80	N V	1s <sup>2</sup> 2p–1s <sup>2</sup> 8d
15.31	70	N V	1s <sup>2</sup> 2p–1s <sup>2</sup> 7d
15.52	65	N V	2s3s–2p3s
15.81	175	N V	1s <sup>2</sup> 2p–1s <sup>2</sup> 6d
16.25	510	N V	1s <sup>2</sup> 2s–1s <sup>2</sup> 4p
16.69	460	N V	1s <sup>2</sup> 2p–1s <sup>2</sup> 5d
18.61	870	N V	1s <sup>2</sup> 2p–1s <sup>2</sup> 4d
19.17	70	N IV	1s <sup>2</sup> 2s2p–1s <sup>2</sup> 2p4p

**Таблица 2.** Относительные интенсивности линий азота при использовании различных систем формирования мишеней

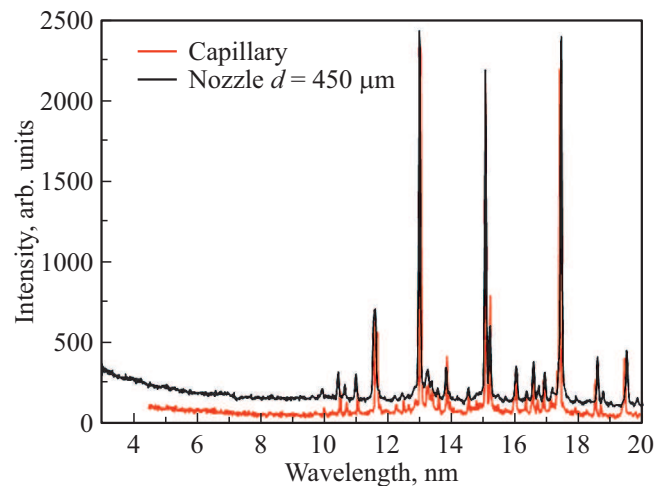
Длина волны, nm	Ион	Интенсивность для различных мишеней			
		Капилляр 500 μm, 3 bar	Сопло 450 μm, 3 bar	Сопло 145 μm, 3 bar	Сопло 145 μm, 6 bar
14.03	N V	0.06	0.12	0.13	0.13
14.74	N V	0.17	0.30	0.23	0.29
15.02	N V	0.06	0.13	0.12	0.15
15.31	N V	0.07	0.26	0.11	0.12
15.81	N V	0.19	0.27	0.22	0.28
16.25	N V	0.56	0.61	0.64	0.63
16.69	N V	0.50	0.60	0.61	0.59
18.61	N V	1.00	1.00	1.00	1.00

линии не наблюдаются. Для коротких длин волн наблюдается рост шумовой составляющей, возникающей вследствие особенностей используемого спектрального прибора. Расшифровка наблюдаемых линий проводилась в соответствии с [14,15] и приведена в табл. 1.

Относительные интенсивности линий для спектров, измеренных при использовании газовых мишеней, формируемых при истечении из различных сопел, приведены в табл. 2. В данной таблице концентрация частиц в зоне лазерной искры растет в ряду капилляр — сопло 145 μm (3 bar) — сопло 145 μm (6 bar) — сопло 450 μm (3 bar).

Из данных, приведенных в табл. 2, можно сделать следующие выводы.

Для ионов азота с одинаковой степенью ионизации при использовании различных газовых мишеней наблюдаются изменения относительной интенсивности эмиссионных линий. Данные изменения достаточно велики

**Рис. 2.** Эмиссионные спектры мишеней из CO<sub>2</sub> при использовании в качестве источника струи капилляра и конусного сопла с  $d_{cr} = 450 \mu\text{m}$ .

(до 4 раз). Вместе с тем наблюдаемое изменение температуры плазмы не приводит к появлению ионов азота с другими степенями ионизации.

Энергия ионизации для иона N V составляет 97.9 eV, энергия ионизации для следующего иона (N VI), эмиссионные линии которого не наблюдались в данном эксперименте, 552 eV.

Из полученных экспериментальных данных видно, что для исследованных типов мишеней вид эмиссионного спектра азота качественно не изменяется. Следовательно, можно утверждать, что для любых газовых мишеней, подобных исследованной, в эмиссионных спектрах будут наблюдаться линии ионов с теми же степенями ионизации.

### Исследования газоструйных мишеней на основе углекислоты

Углекислота — тяжелый молекулярный газ с малой реакционной способностью в условиях опыта, характеризующийся линейчатым эмиссионным спектром с высокоинтенсивными линиями в МР и ЭУФ областях спектра. Простота откачки, удобные термодинамические свойства и доступность делают углекислоту одной из наиболее перспективных газовых мишеней. В качестве мишеней для ЛПИ-источника МР и ЭУФ излучения данный газ исследовался в [7,16,17].

На рис. 2 приведены эмиссионные спектры CO<sub>2</sub>, измеренные при использовании капилляра и конусного сопла с критическим сечением 450 μm при следующих параметрах газа: давление газа на входе в сопло 3 bar, температура газа 300 К.

Исследованный спектральный диапазон составил 3–20 нм. Интенсивность излучения приведена в относительных единицах. Виден ряд интенсивных линий в диапазоне 10–20 нм, сформированных переходами на

**Таблица 3.** Таблица эмиссионных линий CO<sub>2</sub>

Длина волны, nm	Интенсивность, arb. units	Ион	Переход
11.58	260	O V	$1s^22s-1s^24p$
11.64	200	O VI	$1s^22p-1s^25p$
12.46	40	O V	$1s^22s^2-1s^22s5p$
12.85	60	O VII	$1s2p-1s3d$
12.98	1150	O VI	$1s^22p-1s^24d$
13.18	100	O V	$1s^22s2p-1s^22s6d$
13.28	100	O V	$1s^22s2p-1s^22p4p$
13.35	100	O V	$1s^22s2p-1s^22p4p$
13.55	50	O V	$1s^22s^2-1s^22s4p$
13.81	210	O V	$1s^22s2p-1s^22s5d$
13.9	75	O V	$1s^22s^2-1s^22p3d$
15.01	1070	O VI	$1s^22s-1s^23p$
15.15	450	O V	$1s^22s2p-1s^22s4d$
15.89	170	O V	$1s^22p^2-1s^22p4d$
16.26	70	O V	$1s^22p^2-1s^22p4d$
16.46	180	O V	$1s^22s2p-1s^22p3p$
16.5	105	O V	$1s^22p^2-1s^22p4d$
16.8	180	O V	$1s^22s2p-1s^22p3p$
17.02	65	O V	$1s^22s2p-1s^22s4d$
17.22	100	O V	$1s^22s^2-1s^22s3p$
17.31	1130	O VI	$1s^22p-1s^23d$
18.4	100	O VI	$1s^22p-1s^23s$
19.3	200	O V	$1s^22s2p-1s^22s3d$

**Таблица 4.** Относительные интенсивности линий CO<sub>2</sub> при использовании различных систем формирования мишеней

Длина волны, nm	Ион	Интенсивность для различных мишеней			
		Капилляр 500 μm, 3 bar	Сопло 450 μm, 3 bar	Сопло 145 μm, 3 bar	Сопло 145 μm, 6 bar
12.98	O VI	0.95	1.01	0.65	0.90
13.81	O V	0.16	0.08	0.06	0.08
15.01	O VI	0.84	0.90	0.69	0.90
15.15	O V	0.36	0.20	0.19	0.23
15.89	O V	0.16	0.09	0.07	0.09
16.26	O V	0.06	0.02	0.03	0.03
16.46	O V	0.14	0.11	0.08	0.10
16.5	O V	0.09	0.04	0.03	0.05
16.8	O V	0.12	0.08	0.07	0.10
17.31	O VI	1.00	1.00	1.00	1.00
18.4	O VI	0.10	0.12	0.11	0.13
19.3	O V	0.34	0.15	0.17	0.20

ионах O V и O VI. Линии ионов углерода отсутствуют. Из рисунка видно, что использование сверхзвукового сопла приводит к существенному перераспределению интенсивностей эмиссионных линий кислорода с ростом интенсивностей линий при высоких степенях ионизации (O VI). Для коротких длин волн наблюдается увеличение шумовой составляющей, возникающей вследствие особенностей используемого спектрального прибора.

Расшифровка наблюдаемых линий проводилась в соответствии с [14,15,18,19] и приведена в табл. 3.

Относительные интенсивности линий для спектров, измеренных при использовании газовых мишеней CO<sub>2</sub>, формируемых при истечении из различных сопел, приведены в табл. 4. В данной таблице концентрация частиц в зоне лазерной искры растет в ряду капилляр — сопло 145 μm (3 bar) — сопло 145 μm (6 bar) — сопло 450 μm (3 bar).

Из данных, приведенных в табл. 4 можно сделать следующие выводы.

При увеличении концентрации частиц в зоне разряда наблюдается относительный рост линий, соответствующих ионам в высоких степенях ионизации (O VI), что соответствует росту температуры плазмы. Изменение относительных интенсивностей линий достаточно велико (до 3 раз). Вместе с тем наблюдаемое изменение температуры плазмы не приводит к появлению ионов кислорода с другими степенями ионизации.

Для ионов с одинаковой степенью ионизации при использовании различных газовых мишеней наблюдаются изменения относительной интенсивности эмиссионных линий. Данные изменения достаточно велики и могут достигать 50%.

Энергия ионизации для иона O VI составляет 138.1 eV, энергия ионизации для следующего иона (O VII), эмиссионные линии которого не наблюдались в данном эксперименте, 739.3 eV.

Из полученных экспериментальных данных видно, что для исследованных типов мишеней вид эмиссионного спектра углекислоты качественно не изменяется. Следовательно, можно утверждать, что для любых газовых мишеней, подобных исследованной, в эмиссионных спектрах будут наблюдаться линии ионов с теми же степенями ионизации.

## Выводы

В настоящей работе исследованы эмиссионные спектры лазерно-плазменного источника с газоструйными мишенями из различных молекулярных газов. Данные мишени формировались с помощью различных сопел при различных давлениях газа на входе в сопло.

1) Получены эмиссионные спектры лазерно-плазменного источника излучения при использовании различных газовых мишеней с различными молекулярными газами. Проведена расшифровка полученных спектров и определены ионы, излучающие в данном спектральном диапазоне.

Для азота и кислорода спектры газовых мишеней различной структуры при различных давлениях газа на входе в сопло не претерпевают больших изменений. Максимальные степени ионизации, достигаемые в нашем эксперименте, составили N V, O VI.

2) Определены изменения эмиссионных спектров при использовании различных сопел, формирующих струи

различной структуры при различных давлениях газов на входе в сопла.

Обнаружено, что при росте концентрации частиц на входе в сопло наблюдается рост интенсивности эмиссионных линий, соответствующих высоким степеням ионизации и, соответственно, рост температуры плазмы. Также при росте концентраций газа в зоне разряда происходит перераспределение интенсивностей линий для излучающего иона одной степени ионизации. Данное явление целиком определяется ростом концентрации частиц газа в зоне образования лазерной искры при использовании различных систем формирования газовой струи. Вместе с тем максимальная степень ионизации плазмы остается прежней.

Таким образом, используя газовые мишени различной структуры и варьируя давление на входе в них, можно изменять интенсивность отдельных эмиссионных линий в широких пределах. Для качественного изменения спектров необходим резкий рост числа частиц в зоне разряда, который возможен как за счет увеличения давлений на входе в сопло, так и за счет увеличения критического сечения сопел. Для повышения температуры плазмы и интенсивности излучения (при минимизации требований к системе откачки) оптимально использование сопел малого сечения при большом давлении газа на входе в сопло [20].

### Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке грантов Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 19-02-00081, 19-07-00173, 20-02-00708 и 20-02-00364).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] Кузин С.В., Полковников В.Н., Салащенко Н.Н. // Известия РАН. Сер. физ. 2011. Т. 75. В. 1. С. 88–90.
- [2] Chkhalo N.I., Salashchenko N.N. // AIP Adv. 2013. V. 3. N 8. P. 082130.
- [3] Chao W., Harteneck B.D., Liddle J.A., Anderson E.H., Attwood D.T. // Nature. 2005. V. 435. N 7046. P. 1210.
- [4] Suzuki M., Daido H., Choi I.W., Yu, W., Nagai K., Norimatsu T., Fiedorowicz H. // Phys. Plasm. 2003. V. 10. N 1. P. 227–233.
- [5] Smirnov M.B., Becker W. // Phys. Rev. A. 2006. V. 74. N 1. P. 013201.
- [6] Chkhalo N.I., Garakhin S.A., Golubev S.V., Lopatin A.Ya., Nechay A.N., Pestov A.E., Salashchenko N.N., Toropov M.N., Tsybin N.N., Vodopyanov A.V., Yulin S. // Appl. Phys. Lett. 2018. V. 112. N 22. P. 221101.
- [7] Fiedorowicz H., Bartnik A., Szczurek M., Daido H., Sakaya N., Kmetik V., Nakayama T. // Opt. Commun. 1999. V. 163. N 1–3. P. 103.
- [8] Tao Y., Tillack M.S., Sequoia K.L., Burdt R.A., Yuspeh S., Najmabadi F. // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 92. N 25. P. 251501.
- [9] Higashiguchi T., Otsuka T., Yugami N., Jiang W., Endo A., Li B., Kilbane D., Dunne P., O'Sullivan G. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99. N 19. P. 191502.
- [10] Fukugaki K., Amano S., Shimoura A., Inoue T., Miyamoto S., Mochizuki T. // Rev. Sci. Instr. 2006. V. 77. P. 063114.
- [11] Hansson B.A.M., Hemberg O., Hertz H.M. // Rev. Sci. Instr. 2004. V. 75. N 6. P. 2122–2129.
- [12] Нечай А.Н., Салащенко Н.Н., Чхало Н.И. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2017. В. 5. С. 17.
- [13] Wieneke S., Brückner S., Viöl W. // Phys. Plasm. 2008. V. 15. N 12. P. 122508.
- [14] Kelly R.L., Palumbo L.J. Atomic and Ionic Emission Lines below 2000 Angstroms—Hydrogen through Krypton. Washington DC: Naval Research Lab, 1973. N NRL-7599.
- [15] NIST Atomic Spectra Database, Gaithersburg, 2009–2019. <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>
- [16] Kranzusch S., Mann K. // Opt. Commun. 2001. V. 200. N 1–6. P. 223–230.
- [17] Lebert R. et al. // Microelectronic Engineering. 1999. V. 46. N 1-4. P. 465–468.
- [18] Peach G., Saraph H.E., Seaton M.J. // J. Phys. B. 1988. V. 21. N 22. P. 3669.
- [19] Tully J.A., Seaton M.J., Berrington K.A. // J. Phys. B. 1990. V. 23. N 21. P. 3811.
- [20] Müller M., Mey T., Niemeyer J., Lorenz M., Mann K. // AIP Conf. Proc. 2016. V. 1764. N 1. P. 030003.