

Study on Ionized Degree of Ar Plasma in Capillary Discharge*

Xingqiang Zhang¹, Qi Wang²

¹School of Science, Hubei University of Automotive Technology, Shiyan

²National Key Laboratory of Tunable Laser Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin

Email: zhangxingqiang.student@sina.com

Received: Oct. 25th, 2012; revised: Dec. 2nd, 2012; accepted: Dec. 20th, 2012

Abstract: Ionized degree of Ar plasma in capillary discharge soft X-ray laser or Extreme Ultraviolet Lithographic (EUVL) source research was an important parameter which determined the wavelength of the plasma source. According to the characteristics of capillary discharge and the data from literature, we deduced an experiential expression of ionized degree of Ar plasma in capillary discharge by analogy method. With the first set of capillary discharge EUVL source demonstrative device in China, the spectra of Ar plasma was studied. It was found from experiment that either 30 Pa Ar gas discharged by peak pulse current of ~28 kA or 40 Pa Ar gas discharged by peak pulse current of ~34 kA could produce Ar⁷⁺ ion. While the simulating results showed that it was necessary for the 30 Pa and 40 Pa Ar gas to be ionized to Ar⁷⁺ ion by peak pulse current of 24.4 - 39 kA and 32.7 - 52.3 kA respectively. These results proved that the experiential expression had some definite practical significance.

Keywords: Extreme Ultraviolet Lithographic Source; Capillary Discharge; Spectra of Ar Ions; Ionized Degree of Ar Plasma

毛细管放电氩等离子体的电离价研究*

张兴强¹, 王 骐²

¹湖北汽车工业学院理学系, 十堰

²哈尔滨工业大学, 可调谐激光技术国家重点实验室, 哈尔滨

Email: zhangxingqiang.student@sina.com

收稿日期: 2012年10月25日; 修回日期: 2012年12月2日; 录用日期: 2012年12月20日

摘 要: 毛细管放电软 X 射线激光或极紫外光刻光源研究中等离子体的电离价是一个重要的参量, 它决定光源的波长。依据毛细管放电的特点以及参考文献中提供的数据推导出毛细管放电氩等离子体电离价的经验公式。利用国内首台毛细管放电极紫外光刻光源演示装置研究了氩等离子体的光谱, 实验表明峰值~28 kA 的脉冲电流对 30 Pa 氩气放电或峰值~34 kA 的脉冲电流对 40 Pa 氩气放电都产生了 Ar⁷⁺。而公式计算出 30 Pa 和 40 Pa 时分别需要 24.4~39 kA 和 32.7~52.3 kA 的峰值电流。这说明经验公式具有一定的实用意义。

关键词: 极紫外光刻光源; 毛细管放电; 氩离子光谱; Ar 等离子体电离价

1. 引言

毛细管放电类氩氙 46.9 nm 软 X 射线激光的成功演示^[1]为实现小型台式、高效实用的软 X 射线激光器奠定了坚实的基础。采用预 - 主脉冲方式工作的毛细

管放电软 X 射线激光装置首先将氩气电离成+1、+2 价的等离子体, 随后经过适当延时的峰值约 20~40 kA 的主脉冲电流到来后进一步电离、欧姆加热, 并快速箍缩等离子体, 当等离子体的电子温度达到~60 eV、电子密度达到~10¹⁹/cm³时, 可产生类氩氙 46.9 nm 激光输出^[2-5]。在产生激光的过程中, 预电离等离子体的

*基金项目: 国家自然科学基金重点项目(60838005)和哈尔滨工业大学创新团队资助。

电离价对终态等离子体电离价的影响, 以及终态等离子体的电离价对激光的产生及放大等作用, 这些问题一直没有得到深入研究。毛细管快放电过程中, 由于所加的电压和电流都不是线形的或稳恒的, 通常情况下毛细管内的气体都被电离成不同价次的离子而形成等离子体, 某些价次的离子丰度较高, 其它价次的离子丰度较低, 总而言之, 各种价次的离子有一个确定的平均值, 该值的大小作为衡量等离子体被电离的程度, 可以看作是等离子体的电离价。近年来, 由于气体放电等离子体具有较高的能量转换效率等优点被逐步用于极紫外光刻(EUVL)光源的研究^[6-9], 作为四种气体放电方式之一的毛细管放电也包含其中^[9,10]。毛细管放电常以气体作为工作物质, 当加于毛细管两端的高电压击穿管内的工作气体时, 强大的放电电流通过毛细管, 同时产生大量的不同电离价的离子。由于这些离子的辐射波长不同, 因此, 研究毛细管放电等离子体的电离价具有十分重要的意义。本文首先从毛细管放电产生等离子体的等效电荷模型推导氩等离子体电离价的经验公式, 然后应用公式对不同条件下的氩等离子体电离价进行计算, 最后利用毛细管放电 EUVL 光源演示装置进行测谱试验和分析。

2. 氩等离子体电离价的计算

毛细管放电等离子体的等效电荷模型可表述为: 经过毛细管内的总放电电流中, 有 20%~50%的部分沿毛细管内壁流动而损耗, 剩余的部分在等离子体内流动, 形成 Z-箍缩电流。箍缩电流是由定向运动的具有一定电离价的正离子和逆向运动的等电量的自由电子形成, 箍缩电流的一半来源于正离子, 另一半来源于自由电子, 估算出自由电子对箍缩电流的贡献, 就可以大致确定离子的电离价。

在毛细管放电产生等离子体的过程中, 假设毛细管内的氩气在击穿前、后被认为是近似的理想气体, 满足理想气体的状态方程:

$$P = nkT \quad (1)$$

当气体击穿后, 通过毛细管的电流强度定义为 $I = \frac{dQ}{dt}$, 或写成:

$$dQ = Idt \quad (2)$$

毛细管内经过等离子体的 Z-箍缩电流产生的强

磁场作用于电流本身, 使等离子体向轴心产生自箍缩效应, 形成轴向均匀的细长等离子体柱。当等离子体的状态、温度、密度等达到一定条件时, 可成为激光的增益介质。等离子体电流由定向流动的高价离子和逆向流动的大量自由电子组成, 假设原子是 n 价电离的, 那么电流的一半是由自由电子的流动形成的, 则原子的电离价 Q^* 可以近似表示为:

$$Q^* \propto \frac{dQ}{2ne\Delta V} \quad (3)$$

联立(1)~(3)式可得:

$$Q^* \propto \frac{Idt}{2nSe\Delta l} = \frac{IkT}{2PSev} \quad (4)$$

如果引进一个经验常数 g , 则可以将(4)式写成经验公式:

$$Q^* = g \frac{IkT}{2PSev} \quad (5)$$

其中 I, T, P, S, v 分别表示毛细管放电产生等离子体时的 Z-箍缩电流、电子温度、等离子体压强、等离子体柱的横截面积、电荷定向运动的平均速度; k 和 e 分别是波耳兹曼常数和—个电子所带的电量; dQ 为单位时间内通过等离子体截面的电量, ΔV 为单位时间内电荷通过等离子体截面后所占的体积, 有关系式 $\Delta V = S\Delta l$, $v = \Delta l/dt$, 通常取 $v = 3 \times 10^5$ m/s。

为确定经验常数 g , 采用类推的方法。文献中^[11]给出毛细管长度 10 cm, 内径 3 mm 时, 等离子体的电阻率计算公式为

$$\eta = 5.2 \times 10^{-3} \frac{Z^* \ln \Lambda}{T^{\frac{3}{2}}} (\Omega \cdot \text{cm}),$$

库仑对数 $\ln \Lambda$ 取 9, Z^* 是氩离子的电离价。放电开始时氩等离子体的 $T_0 = 0.5$ eV, $n_0 = 2.25 \times 10^{16}$ cm⁻³, 初始电阻为 18.82 Ω , 末态电阻为 0.01 Ω 。根据相关参数, 推导出 $g \approx 2.4 \times 10^{-12}$ 。如果不考虑毛细管放电过程中等离子体的箍缩, 只定性计算初始氩气被电离到特定温度时, 电流是由几价离子形成的, 此时可将(5)式近似表示为:

$$Q^* \approx 2.4 \times 10^{-12} \frac{IkT}{2PSev} \quad (6)$$

利用公式(6)对长度为 1 cm、内径为 5 mm 的陶瓷毛细管进行计算, 当电子温度为 30 eV 时, 毛细管放

电氩等离子体的电离价如表 1 所示。表中 I 和 I_0 分别表示 Z-箍缩电流和毛细管放电损耗率为 20%~50%时所需的放电电流有效值。经验公式给出了在不同气压下,一定放电电流的有效值所获得等离子体的平均电离价,电离价的有效范围处于这个小数的取整部分与取整加 1 之间,如果脉冲放电电流的上升沿较慢,电离价的有效范围应当适当扩大,这与实际毛细管的放电参数、毛细管材料、工质、供气方式、电极形状、有效阻抗等因素有关。

3. 实验研究

毛细管放电 EUVL 光源演示装置原理图如图 1 所示,由工控计算机、电源、放电室、罗兰圆谱仪等组成。由于整套设备主要用于研究波长很短的极紫外光,因此,采用涡轮机械泵和分子泵组成的二级真空系统首先将放电室、罗兰圆谱仪、极紫外光探测器以及它们之间的管路部分抽成高真空,其次向放电室内充入氩气并维持一定的工作气压。毛细管安装在放电

室内,放电等离子体辐射完毕,由真空系统快速抽出放电室。利用工控计算机控制电源对放电室内的充气毛细管放电,产生的高温高密度等离子体成为极紫外光源,处于毛细管轴线上的罗兰圆谱仪对极紫外光进行分光,由探测器接收光谱信号,用计算机记录下来。流经毛细管的电流和加在毛细管两端的电压由示波器读出。

放电试验表明,毛细管放电 EUVL 光源装置供给 ~30 kV 的电压和峰值约 20~40 kA 的脉冲电流。当氩气气压维持在 40 Pa 时,罗兰圆谱仪测得氩等离子体光谱如图 2(a)所示,示波器显示的电流峰值为~34 kA;当氩气气压维持在 30 Pa 时,所测光谱如图 2(b)所示,相应的电流峰值~28 kA;图 2(c)是氩等离子体在 80 Pa 时的光谱,作为参考谱线。

4. 实验结果及分析

为便于比较,图 2 中(a)-(c)的中心波长都是 30.7 nm。氩的四条标准谱线 24.3 nm、25.6 nm、30.3 nm

Table 1. Ionized degree of Ar plasma in capillary discharge
表 1. 毛细管放电氩等离子体的电离价

I / I_0 (kA)	20 Pa	30 Pa	40 Pa	50 Pa	60 Pa	70 Pa	80 Pa
10/12.5~20	7.64713	5.09809	3.82357	3.05885	2.54904	2.18490	1.91178
11/13.75~22	8.41185	5.60790	4.20592	3.36474	2.80395	2.40338	2.10296
12/15~24	9.17656	6.11771	4.58828	3.67062	3.05885	2.62187	2.29414
13/16.25~26	9.94127	6.62752	4.97064	3.97651	3.31376	2.84036	2.48532
14/17.5~28	10.70599	7.13732	5.35299	4.28239	3.56866	3.05885	2.67650
15/18.75~30	11.47070	7.64713	5.73535	4.58828	3.82357	3.27734	2.86768
16/20~32	12.23541	8.15694	6.11771	4.89417	4.07847	3.49583	3.05885
17/21.25~34	13.00013	8.66675	6.50006	5.20005	4.33338	3.71432	3.25003
18/22.5~36	13.76484	9.17656	6.88242	5.50594	4.58828	3.93281	3.44121
19/23.75~38	14.52955	9.68637	7.26478	5.81182	4.84318	4.15130	3.63239
20/25~40	15.29427	10.19618	7.64713	6.11771	5.09809	4.36979	3.82357
21/26.25~42	16.05898	10.70599	8.02949	6.42359	5.35299	4.58828	4.01475
22/27.5~44	16.82369	11.21580	8.41185	6.72948	5.60790	4.80677	4.20592
23/28.75~46	17.58841	11.72561	8.79420	7.03536	5.86280	5.02526	4.39710
24/30~48	18.35312	12.23541	9.17656	7.34125	6.11771	5.24375	4.58828
25/31.25~50	19.11783	12.74522	9.55892	7.64713	6.37261	5.46224	4.77946
26/32.5~52	19.88255	13.25503	9.94127	7.95302	6.62752	5.68073	4.97064
27/33.75~54	20.64726	13.76484	10.32363	8.25890	6.88242	5.89922	5.16182
28/35~56	21.41197	14.27465	10.70599	8.56479	7.13732	6.11771	5.35299

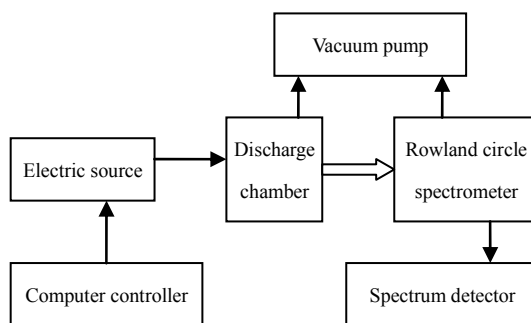


Figure 1. Schematic diagram of capillary discharge EUVL source demonstrative device
图 1. 毛细管放电 EUVL 光源演示装置原理图

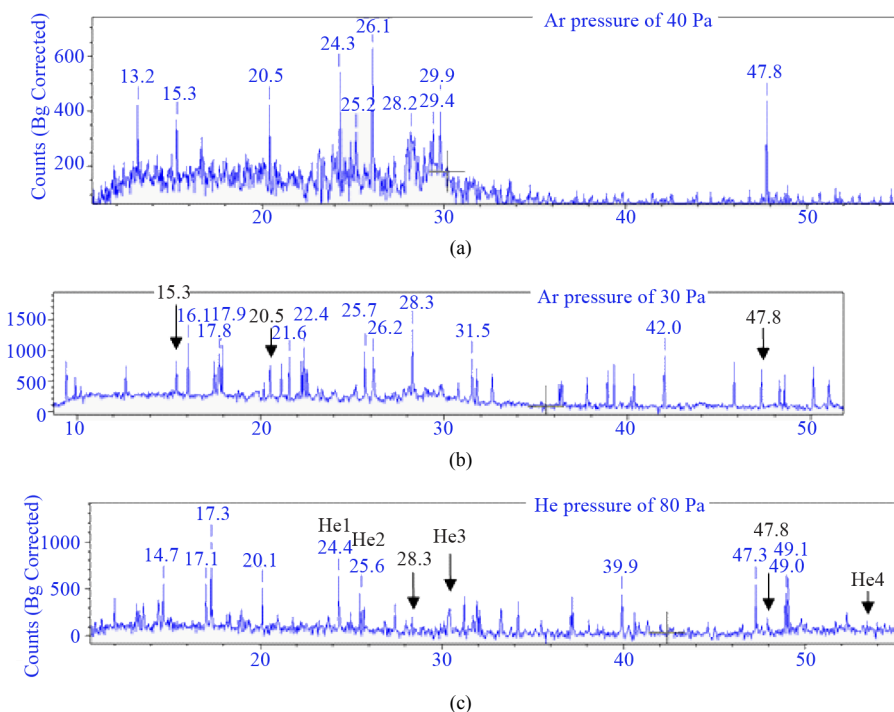


Figure 2. Spectrum of Ar plasma at 40 Pa (a) and 30 Pa (b) and He plasma at 80 Pa (c)
图 2. 40 Pa (a)和 30 Pa (b)的氩等离子体光谱及 80 Pa (c)的氦等离子体光谱

和 53.7 nm, 用罗兰圆谱仪测得为 24.4 nm、25.6 nm、30.3 nm 和 53.7 nm, 如图 2(c)中的 He1、He2、He3 和 He4 所示, 中心波长 30.7 nm 左侧的 He1 被放大了 0.1 nm。其中 He1 和 He2 谱线明显, He3 可见, He4 只显出一个小尖峰。

图 2(a)中 47.8 nm 谱线的相对强度比图 2(b)中的强, 在图 2(c)中它仍然显出一个小尖峰, 从实验现象可以判断, 这条谱线同时出现在氩等离子体和氦等离子体光谱中, 必然出自同一来源, 那么这条谱线既不是氩离子的, 也不是氦离子的。毛细管用纯净的 Al_2O_3 陶瓷材料制成, 强电流通过毛细管时, 管壁很容易烧蚀, 由此推测, 47.8 nm 谱线可能来自铝离子或氧离

子。与铝离子或氧离子的标准谱线对比, 发现 Al^{6+} 的 $2s2p^33p(^5S_0)-2s2p^33d(^3D_0)$ 跃迁产生的 47.856 nm 谱线和 O^{3+} 的 $2s^23p-2p^23s(^1D)$ 跃迁产生的 47.6513 nm 谱线都有很大的跃迁几率。此外, 图 2(b)中的 28.3 nm 谱线也出现在图 2(c)中, 但在图 2(a)中测得它为 28.2 nm, 同理, 28.2 nm 谱线也应该来源于铝离子或氧离子。与铝离子或氧离子的标准谱线对比, 发现 Al^{6+} 的 $2s2p^4-2p^5$ 跃迁产生的 28.266 nm 谱线有很大的跃迁几率, 而 O^{3+} 在 28.2 nm 附近没有标准谱线。综上可知, 47.8 nm 谱线应该来源于 Al^{6+} 。图 2(c)中的 20.1 nm 谱线很强, 图 2(b)中它在 20.5 nm 谱线前露出一个小尖峰, 在图 2(a)中完全被噪声淹没。与铝离子的标准谱

线对比,发现 Al^{7+} 的 $2s^2 2p^3 s-2s 2p^2 3d$ 跃迁产生的 20.1804 nm 和 20.2893 nm 谱线都有很大的跃迁几率,这两条谱线与 20.5 nm 无关。从 47.8 nm、28.2 nm 和 20.1 nm 谱线的相对强度可得,氩等离子体有利于 Al^{6+} 的产生,而氦等离子体有利于 Al^{7+} 的产生。

图 2(a)中 26.1 nm 谱线非常强,在图 2(b)中测得它为 26.2 nm,但在图 2(c)中这条谱线消失了,由此推测,这条谱线是氩等离子体的。与氩离子的标准谱线对比,发现 Ar^{7+} 的 $2p^6 3d-2p^6 4f$ 跃迁产生的 26.250 nm、26.330 nm 和 26.350 nm 谱线都有很大的跃迁几率。事实上, Ar^{7+} 从 12.0087 nm 到 23.0867 nm 共产生 9 条标准谱线: $2p^6 3s-2p^6 5p$ 跃迁产生的 12.0087 nm 和 12.0158 nm 谱线; $2p^6 3s-2p^6 4p$ 跃迁产生的 15.8925 nm 和 15.9180 nm 谱线; $2p^6 3d-2p^6 5f$ 跃迁产生的 18.4258 nm、18.4302 nm 和 18.4308 nm 谱线; $2p^6 3p-2p^6 4s$ 跃迁产生的 22.9428 nm 和 23.0867 nm 谱线,这些谱线都有很大的跃迁几率。图 2(a)和图 2(b)中的 15.3 nm 谱线都很强,图 2(b)中的 16.1 nm 谱线远大于图 2(a)中的情况,但这两条谱线在图 2(c)中都消失了,因此它们是氩等离子体产生的。考虑 Ar^{7+} 的标准谱线和谱线间隔,以及罗兰圆谱仪的测量误差,推测这两条谱线是 15.8925 nm 和 15.9180 nm 两条标准谱线,偏离中心波长越远,谱线间隔被放大得越多。

实验测得氩气气压为 30 Pa 和 40 Pa 时,毛细管放电的电流峰值分别为~28 kA 和~34 kA,电流的有效值分别为~19.8 kA 和~24 kA。在两种气压下,罗兰圆谱仪都测得了 Ar^{7+} 的光谱,这说明 Ar^{7+} 有较高的离子丰度,在这种放电条件下,氩等离子体的平均电离价应该在+7 附近,否则不会出现 Ar^{7+} 的光谱。

表 1 给出平均电子温度为 30 eV 时,30 Pa 和 40 Pa 氩气被放电箍缩到 Ar^{7+} ,需要~13.8 kA 和~18.5 kA 的箍缩电流。在毛细管放电过程中,放电电流很大,有 20%~50%的放电电流通过毛细管管壁流过而损耗,而用于箍缩等离子体的 Z-箍缩电流总小于放电电流。按照这种电流损耗率,计算出所需的放电电流为 17.25~27.5 kA 和 23.125~37 kA,相应的峰值分别为 24.4~39 kA 和 32.7~52.3 kA。与实验值相比,所计算的放电电流有效值范围和峰值范围是符合实际情况的。这说明所推导的经验公式具有一定的实用意义。

5. 结论

毛细管放电软 X 射线激光或毛细管放电 EUVL 光源研究中,氩等离子体的电离价是决定光源辐射波长的重要参量。本文首先推导出毛细管放电氩等离子体电离价的经验公式,并对一定条件下氩等离子体的电离价进行了计算;其次采用毛细管放电 EUVL 光源演示装置研究了氩及氦的等离子体光谱。经分析发现,毛细管放电产生了 Ar^{7+} ,满足最初的设计要求,同时也证实了公式(6)符合毛细管放电的实际情况。这为进一步研究毛细管放电等离子体的电离价奠定了基础。由于装置结构的限制,不能实测毛细管放电的 Z-箍缩电流,只能测量放电电流,这使得实验与理论比较存在一定的困难。但两种不同气压下所测放电电流与计算值较好地吻合,也反映出所计算的 Z-箍缩电流具有一定的实用意义。

参考文献 (References)

- [1] J. J. Rocca, V. Shlyaptsev, F. G. Tomasel, et al. Demonstration of a discharge pumped table-top soft-X-ray laser. *Physical Review Letters*, 1994, 73(16): 2192-2195.
- [2] Y. P. Zhao, Y. L. Cheng, B. H. Luan, et al. Effects of capillary discharge current on the time of lasing onset of soft X-ray laser at low pressure. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2006, 39: 342-346.
- [3] 张兴强, 程元丽, 王骥等. 延时对毛细管放电类氩 46.9 nm 软 X 射线激光的影响[J]. *中国激光*, 2008, 35(3): 363-366.
- [4] X. Q. Zhang, Y. L. Cheng and Q. Wang. Characteristics of a Ne-like Ar 46.9-nm soft X-ray laser in capillary discharge at a low Ar pressure. *Laser Physics*, 2008, 18(8): 958-961.
- [5] 张兴强, 程元丽, 王骥等. 主开关改进对毛细管放电软 X 光激光的影响[J]. *中国激光*, 2009, 36(2): 324-327.
- [6] V. Bakshi, R. Lebert, B. Jagle, et al. Status report on EUV source development and EUV source applications in EUVL. 23rd European Mask and Lithography Conference (EMLC), 2007, 6533: 653315-1-653315-11.
- [7] M. Yochioka, D. Bolshukhin, G. Hergenhan, et al. Progress on Xe-DPP source development for Alpha phase. *Proceedings of SPIE*, 2008, 6921: 69210U-1-69210U-6.
- [8] M. Corthout, R. Apetz, J. Bruderhann, et al. Sn DPP source-collector modules: Status of alpha sources, beta development and the scalability to HVM. *Proceedings of SPIE*, 2008, 6921: 69210V-1-69210V-12.
- [9] T. Ceccotti. EUV lithography development in Europe: Present status and perspectives. *Proceedings of SPIE*, 2004, 5196: 57-70.
- [10] 张兴强, 程元丽, 王骥. 可用于极紫外光刻的三线毛细管的概念设计[J]. *中国激光*, 2008, 35: 81-84.
- [11] 程元丽. 毛细管放电类氩 46.9 nm 软 X 射线激光研究[D]. 哈尔滨工业大学工学, 2006, 3: 43-45.