

激光等离子体X射线源及应用

陈时胜

(中国科学院上海光机所)

摘要: 高功率激光经聚焦后,靶面吸收束能迅速变成等离子体并转变为高温热辐射X射线源。激光等离子体X光源在科学与技术领域有广泛应用,包括X光谱学、X光显微术、X光刻、辐射计量、材料及仪器X光射性检测、高温高密度天体物理、X激光及激光核聚变、EXAFS等。本文讨论激光等离子体形成的物理过程及影响X光辐射的诸因素,重点介绍在X光刻及X光显微镜方面的应用。

一、激光等离子体

迄今,高功率激光经聚焦后靶面激光功率密度已高达 $>10^{16}\text{W}/\text{cm}^2$,在极短时间内,固体吸收束能迅速变成等离子体,并转变为高温热辐射X射线源。

已用于激光核聚变的激光器已可以在 10^{-9}s 内输出高达 100kJ 能量。但对于应用需要高的重复率,可供选择的器件只有准分子或固体激光器,它们可实现 $\sim 1\text{J}/10\text{ns}$ 、重复率为 10^3Hz 的输出。近年来,输出能力为 $1\text{J}/<1\text{ps}$ 的脉冲器件的发展已成为高功率器件发展中最引人注目的新领域。由于短波长激光以更高效率转化为X光辐射,人们都致力于用 Nd^{3+} 玻璃激光的二倍频或三倍频或准分子激光与靶相互作用研究。虽然 CO_2 激光器具有较高的衍射效率,但是由于波长太长,因而X光转化效率低,近年来几乎已经放弃这种技术途径。

束能吸收图1给出激光产生等离子体的基本物理图像。

当靶面激光功率密度 $>10^{11}\sim 10^{12}\text{W}/\text{cm}^2$ 时,光束的电场首先使靶表面材料(厚度小于 $1\mu\text{m}$)击穿电离,由于电子-离子碰撞将电子进一步加热,并通过电子热导将靶面材料进一步电离从而生成等离子体。当激光继续加热时,等离子体将继续往真空中绝热膨胀,从而形成如图2的一幅物理图像。

考虑频率为 ω_L 的激光入射到均匀密度等离子体中的情形。等离子体的电子的自由振荡频率(简称等离子体频率) ω_p 由其电子密度 n 决定,表示为:

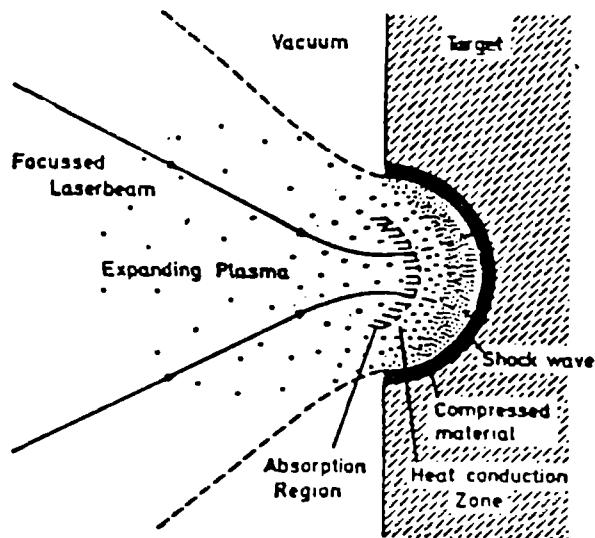


Fig.1. The formation of a laser-produced plasma on a planar solid target

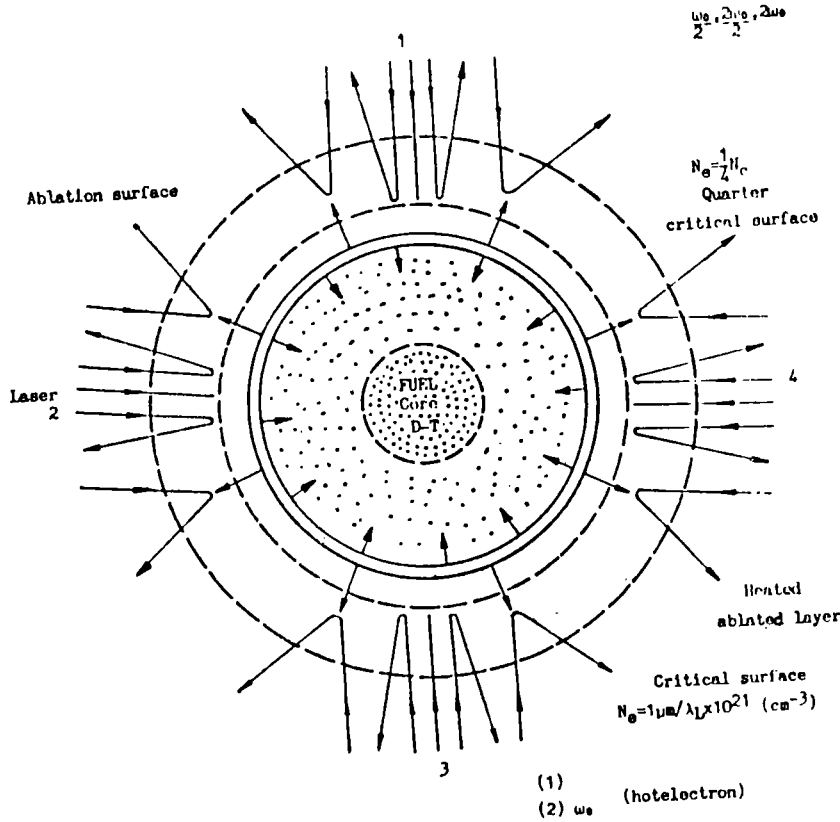


Figure 2. Phenomenological expression of laser plasma

$$\omega_p = (4\pi n e^2 / m)^{1/2} \tag{1}$$

等离子体中电子与离子的碰撞频率记为 ν ，则等离子体的介电常数为 ϵ ：

$$\epsilon = 1 - \omega_p^2 / \omega_L (\omega_L + \nu) \tag{2}$$

假定，等离子体的吸收是由碰撞起主导作用，则吸收 $\alpha \propto \nu$ 即成正比。因为碰撞是库仑碰撞，所以吸收与温度依赖关系 $\alpha \propto t^{-2/3}$ 。就是说，温度上升，碰撞吸收便急剧下降。当 $\omega_L < \omega_p$ 时，等离子体介电常数 ϵ 变成纯虚数，激光在等离子体中不再传播而是产生全反射。

激光在等离子体中传输只能到达所谓临界密度面， $n_c = 10^{21} (\lambda / \mu m)^{-2} \text{ cm}^{-3}$ ，其中 λ 为激光波长。从该式可见，对波长约为 $1 \mu m$ 的激光，临界密度面的密度约为 10^{21} cm^{-3} （比固体中电子密度低 10^8 倍）。对长波长激光，相应的临界密度也低。但是，为了获得高的X光转化效率，必须有高的等离子体密度，而对长波长激光，只能通过电子热传导将电子所吸收的激光能量输送到高密度区。研究表明，在等离子体中，存在非常陡的密度梯度面，而电子在这种陡的密度梯度面处的热导非常低，这就导致激光进一步加热临界密度外的低密度等离子体，并使温度进一步升高而使激光吸收下降。

但短波长激光则可以穿透到更高密度的等离子体中，由于此时吸收发生在等离子体高密度区（有更多的质量），因此，等离子体的温度也较低，更有利于激光吸收。此种情况下的能量运输不是靠电子热导而是碰撞能量转移起主要作用，X光转换效率更高。

二、激光等离子体中的 X 光辐射

激光产生的等离子体中，原子只是部分被电离（起码对高 Z 材料是如此），因此，等离子体的 X 光辐射是由束缚-束缚，束缚-自由及自由-自由辐射三部分组成的。感兴趣的是其辐射的能量落在 $0.1\sim 5\text{keV}$ 内。对给定的 X 光能量范围，其转化效率与激光参量及靶材 Z 有关。为了充分利用激光等离子体 X 光源，我们有必要弄清影响 X 光辐射的诸因素：靶面照度（脉冲能量及脉宽，波长）及靶材选择等。

(a)

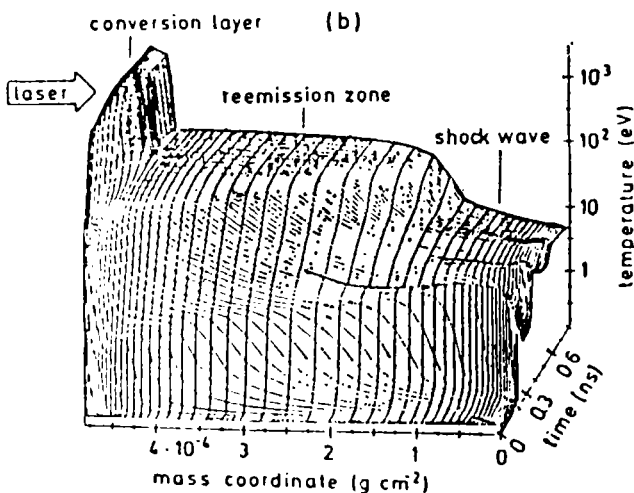
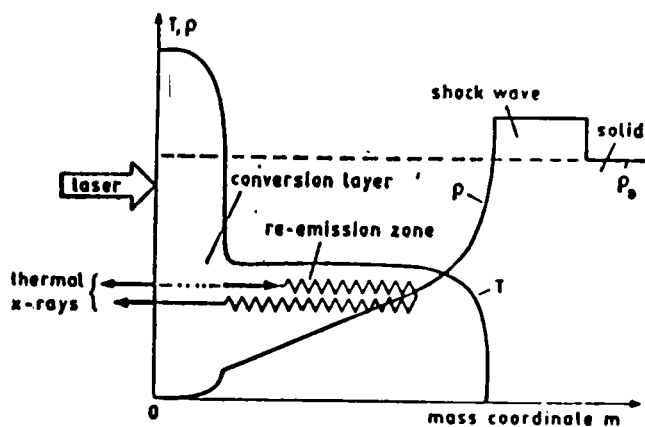


Fig.3. (a) Schematic representation of the hydrodynamic flow induced by strong laser heating of a solid high- Z material. T is the material temperature, P the density.

(b) Material temperature versus mass coordinate and time in a gold foil with an initial thickness of $4.7 \times 10^{-8} \text{g cm}^{-2}$ (corresponding to $2.4 \mu\text{m}$ of solid gold) according to a MULTI calculation. Absorbed laser flux 10^{16}W cm^{-2} laser wavelength $0.44 \mu\text{m}$, flux limit factor $f = 0.08$, pulse duration 0.3ns .

激光等离子体X光辐射可分为亚千电子伏 (0.1~0.75keV) 及千电子伏 (0.75keV~3keV) 两大范围。亚千电子伏辐射在X光显微镜中有重要意义, 这是因为氧与碳原子的K边落在23~44 Å (即水窗范围)。而千电子伏辐射则对X光刻有重要意义, 这是因为它产生较小的衍射并且它对掩膜基底有强的穿透率。

通常将等离子体X光辐射分为两个不同区域 (如图3所示), 转化层, 再辐射层。对X光辐射起重要作用的是转化层和再辐射层。转化层是由激光波长、电子热导以及热辐射系数决定的, 它有高的温度(10^7 K), 但密度较低。它对X光辐射是光性薄的, 因此辐射向着靶及真空两个方向上均等辐射。

转化层在靶内方向上的辐射被再辐射层吸收, 再辐射层是光性厚的, 并以黑体方式辐射。由于X光具有相对强的穿透力, 因此冲击波区的消驰速率很高。此时温度较低($\sim 10^6$ K) 而密度很高。将等离子体区分为转化层及再辐射层这种物理图像适用于高Z靶材。而对低Z靶材, 因为此时固体中消融物质的过程主要是由电子热导起作用, 此种情况下, 只存在一个转化层。

1. 不同原子Z的辐射谱

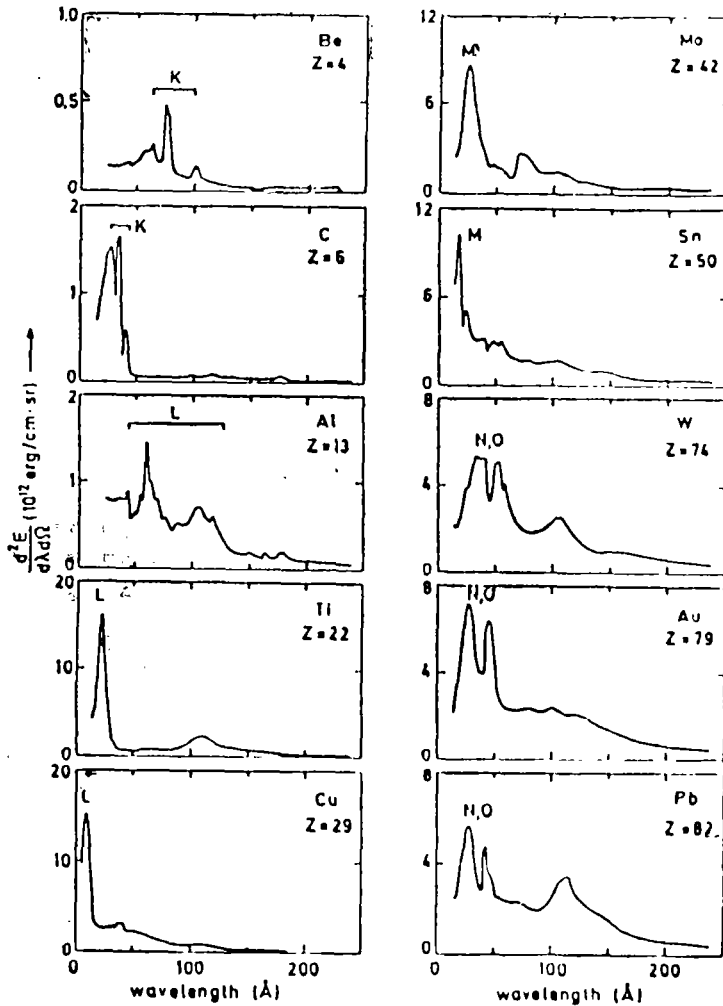


Fig.4. Absolutely measured spectra emitted by laser irradiated plane targets of different elements. Intensity $3 \times 10^{18} \text{W/cm}^2$, pulse duration 3 ns, wavelength $0.53 \mu\text{m}$

利用透射光栅谱仪，我们已经测量了不同元素 Z 在 $5 \text{ \AA} \sim 250 \text{ \AA}$ 范围内的绝对辐射谱。图 4 给出了部分元素的绝对谱的全貌。这些谱是由多阶离化原子不同壳层上的电子跃迁贡献的，包括 K, L, M, N, O, …… 等不同壳层的跃迁。

(1) 各谱带强度随 Z 单调上升。K 带的峰值约在 Al ($Z = 13$) 附近。而 L 带则随 Z 增长很快，在 Cu ($Z = 29$) 附近达到最大。而 Se ($Z = 34$) 的 L 带峰已达到饱和。M 带的峰出现在 Sn ($Z = 50$) 处，但 N, O 带的增长较慢。

(2) 光谱波长的位移满足莫斯里定律，即 $\lambda \propto 1/Z$ ，例如 Be 的 K 带位于 $\sim 70 \text{ \AA}$ ，而 C 的 K 带却向短波位移到 $\sim 35 \text{ \AA}$ 。

研究表明：高 Z 元素的 X 光辐射主要来自光性薄的转化层及类黑体辐射的再辐射层。

2. X光转化效率与靶原子 Z 的关系

图 5 给出从某些元素的等离子体中得到的单位立体角内的 X 光发射转化效率（对所有光谱积分得到）与靶原子序的 Z 关系，它呈单调上升。Au ($Z = 79$) 处，其效率高达 50%。这里的测量是保持靶面功率密度为 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 不变时得到的。诚然，除靶材 Z 外，通过选择最佳的激光参量，上述所给的转化效率尚可提高。

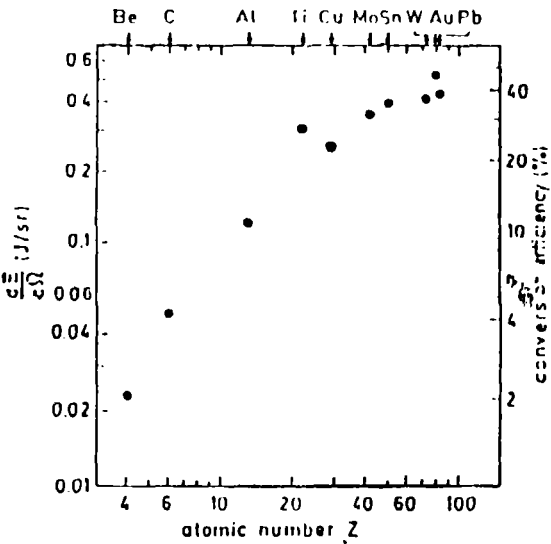


Fig.5. X-ray energy per solid angle and total conversion efficiency as a function of the atomic number of the target material

3. 亚千及千电子伏 X 光转化效率与靶面激光功率密度的关系

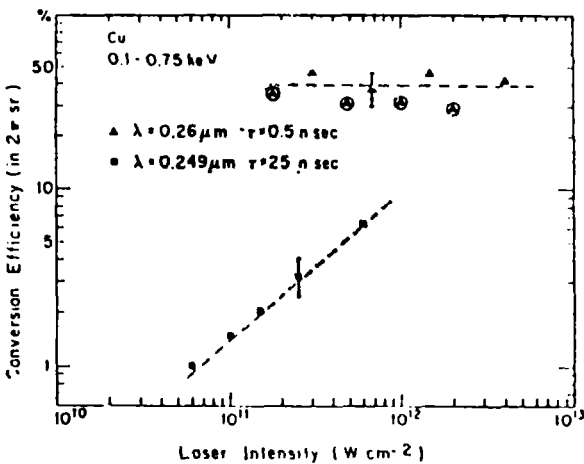


Figure 6. Sub-keV conversion efficiencies as a function of laser intensity. Circled data points were obtained using a large focal spot ($\sim 1 \text{ mm}$)

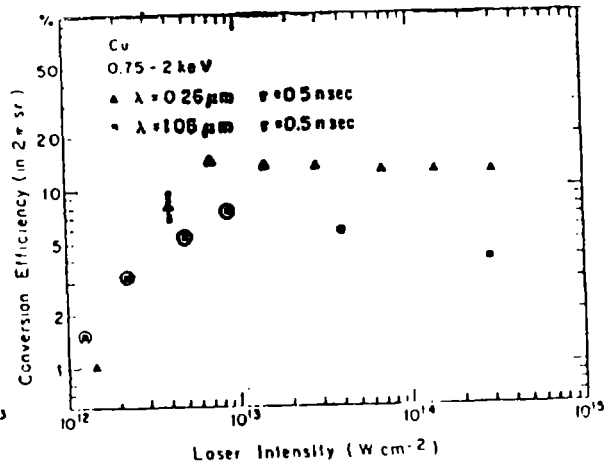


Figure 7. keV conversion efficiencies as a function of laser intensity. Circled data points were obtained using a large focal spot ($\sim 1 \text{ mm}$)

亚千电子伏

对 $0.1 \sim 0.75 \text{ keV}$ 范围内的 X 光谱作积分, 并对立体角积分 (X 光空间分布近似余弦分布)。因此得到总的 X 光发射通量。图 6 给出了 Cu 靶的转化效率与靶面功率密度的关系。其它靶材也具有相似的曲线走向 (其中 $\lambda = 0.26 \mu\text{m}$, $\tau = 0.5 \text{ ns}$ 为钕玻璃四倍频激光, 而 $\lambda = 0.24 \mu\text{m}$, $\tau = 25 \text{ ns}$ 为准分子激光)。

从图 6 可见, 在激光功率密度 $I < 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 时, 短脉冲 (0.5 ns) 激光转换效率更高 ($\sim 40\%$)。而长脉冲 (25 ns) 的转换效率只约 6%。这可解释为在长脉冲作用期间, 由于横向能量转移, 从而使等离子体强度下降而引起。理论研究指出, 在低能亚千电子伏区域 ($t < 100 \text{ eV}$) 的发射系数 $e_0(t, h\nu)$ 是与温度有强烈依赖关系。因此, 在靶面功率密度 $I < 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 区域内, 应利用短脉冲激光加热等离子体。

研究结果表明: 靶面功率密度为 $I = 10^{11} \text{ W/cm}^2 \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 之间, 利用 $\lambda = 0.26 \mu\text{m}$ 激光与 $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ 激光辐照靶, 其亚千伏 X 光的转化效率比后者高三倍。因此, 利用短波长激光更有利。

千电上伏区

图 7 给出了一组 Cu 靶的转化效率与靶面功率密度的关系。从该图中看到, 在靶面功率密度低于 $5 \times 10^{12} \sim 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, 转换效率突然下降, 这是因为当功率密度低于 $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, 对 Cu 等离子体其温度低于 500 eV , 与温度 t 有关的辐射 ($\sim 1 \text{ keV}$ 范围) 系数迅速下降。因此, 对 Cu, 要获得在 $\sim 1 \text{ keV}$ 范围内较高的 X 光转换效率, 要求靶面功率密度要高于 $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 。

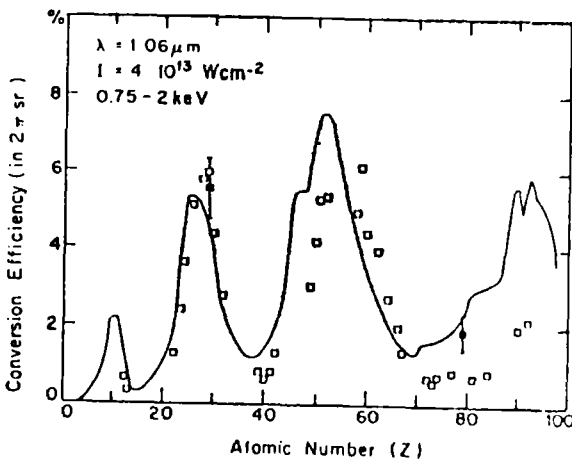


Figure 8. Experimental and theoretical keV X-ray conversion efficiency as a function of atomic number. We show also the experimental values (\square) obtained by Glibert et al

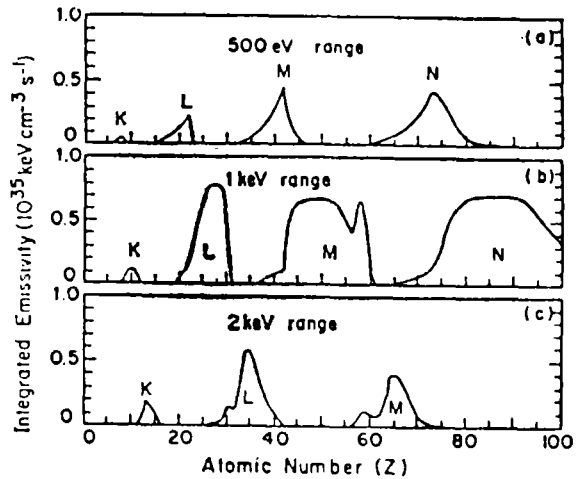


Figure 9. Integrated emissivity for K-, L-, M-, and N-shell ions as a function of atomic number: (a) in the 500-keV range ($250 \leq h\nu \leq 750$), (b) in the 1-keV range ($750 \leq h\nu \leq 2500$), (c) in the 2-keV range ($1250 \leq h\nu \leq 2500$). The plasma conditions are the same as for Fig. 3

在 1keV 区域内的X光转换效率与原子序数Z的关系示于图 8 中。这是对给定的靶面功率密度低于 $4 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ 得到的。图 8 所示的峰分别对应于K, L, M, N 壳层上的跃迁。显然图 8 与图 4 不同, 因为图 4 是对所有的光谱积分而得到的, 而这里讨论的只是对某个确定范围内(1keV)的谱。在一个给定的温度区, 主要贡献来自K, L, M, N 壳层。例如图 9 给出的理论结果。在1keV时, 选择 $Z \approx 33$, (L带) 或 $Z \approx 50$ (M带), $Z \approx 85$ (N带) 的元素将会得到最高的X光转换效率。

总之, 通过正确选择靶原子序 Z, 可望在 1keV 区获得高达20%的X光转换效率(对于 $\lambda = 0.26\mu\text{m}$) 或8%的效率(对于 $\lambda = 1.06\mu\text{m}$)。

考虑到光脉冲对 1keV X 光转换效率的影响, 迄今实验表明: 脉宽小于0.4ns时, 转换效率较低, 这是因为这时等离子体未足够膨胀的X光发光区太小, 而对大约10ns的脉冲, 且功率密度 $2 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ 时, 转换效率最高。一般应将脉宽选在 1~10ns内。

此外, 应该指出的是用短波长激光(例如 $\lambda = 0.26\mu\text{m}$) 有利于获得高的转换效率。但利用钕玻璃或YAG激光时, 必须将其倍频才获得高的X光转换效率。与此相矛盾的是, YAG 的四倍频的转换效率大约只有 20%~30%。因此, 似乎不必用YAG的四倍频而是直接用基波(1.06 μm) 去产生X光。但准分子激光应当是最好的候选者。(不过, 目前商售的准分子器件的脉宽仍太长)。

三、应 用

激光等离子体X光源在科学与技术领域有广泛的应用, 包括X光谱学, X光显微镜, X光刻, 辐射计量, 材料及仪器X光特性检测, 高温高密度天体物理, X^l激光及激光核聚变, EXAFS等领域。这里仅讨论部分应用。

1. X光刻

大尺寸的集成电路的发展要求高分辨率光刻, 而且要求的焦深约 $1\mu\text{m}$ 。即使使用UV准分子作光刻, 其深度也限在 $0.5\mu\text{m}$ 。因此, 需要发展适于具有亚微米分辨的制版用的X光刻技术。理论分析表明: 最佳的X光刻波长为 10\AA , 它给出最佳的分辨小于 $0.2\mu\text{m}$ 。迄今, 用同步辐射作源的X光刻已制作出分辨力小于 $0.1\mu\text{m}$ 的重版图样。

图10及图11分别给出各种元素X光发射峰的位置及光子能量约为 1keV 的不同元素的X

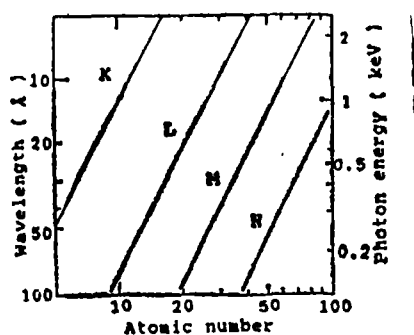


Fig.10. Simplified relation of X-ray wavelength with atomic number of target material

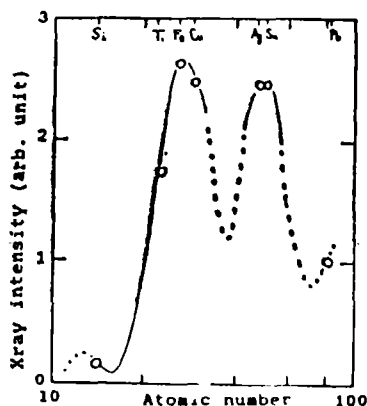


Fig.11. Target material dependence of X-rays around 1 keV

光发射效率。显然，适于光刻的激光等离子体的最佳靶材为Fe(26)，Cu(29)及Sn(50)。它们在1keV光子能量处有最佳的转换效率。

对激光器的要求

知道影响X光转换效率诸因素后，还需要弄清掩膜透过率，光阻材料的灵敏度以及薄膜(Wafer)穿透深度等，这样才能确定所需的激光参量。

激光器所需的平均功率 (P_L 单位为W) 可表示为:

$$P_L = 0.1 F_R D^2 / (\eta_T t_{exp}) \quad (3)$$

其中, D —源膜距离 (cm); t_{exp} —曝光时间 (sec); F_R —光阻层的灵敏度 (mJ/cm^2); η_T —总转换效率%/Sr, 其中已考虑到掩膜材料的吸收。实验结果表明, 对Si, SiC, Si₃N₄, BN等材料制作的掩膜(厚 $2\mu m$), 用YAG激光照射靶以产生X光源时, 总转换效率为 $\sim 1\%$ /Sr。图12给出了由公式(3)计算所需的激光参量。(计算时假定激光焦点直径为 $100\mu m$, 靶面功率密度为 $1 \times 10^{13} W/cm^2$)。

商用的光阻材料对1keV的X光子能量的灵敏度为 $10mJ/cm^2 \sim 100mJ/cm^2$ 。因此, 从图中看到, 所需的YAG器件的平均功率(即能量 $E(L)$ 与重复率 ν 之积 $E(L)\nu(Hz)$) 起码要高于100W。(即光阻层灵敏度为 $25mJ/cm^2$ 时)。目前只有板条状YAG或磷酸盐Nd³⁺器件才能达到此水平。用KrF激光器时, 总效率提高三倍, 因此, 要求的平均功率相应的小三倍。不过, 靶面激光功率密度 $I > 10^9 W/cm^2$ 这个条件, 通常商用KrF器件尚难达到此要求。

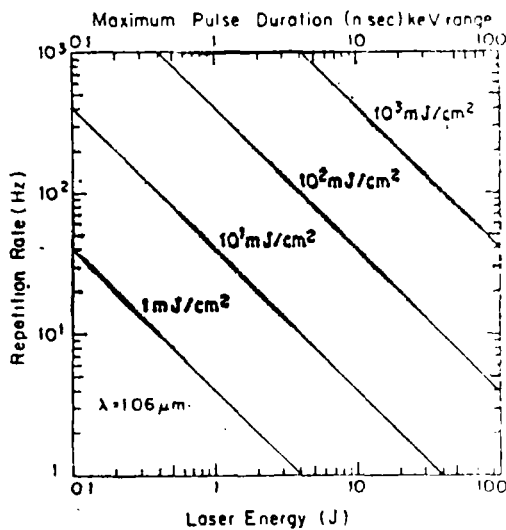


Figure 12. Laser parameter requirements to obtain 36 wafers/hour for different X-ray resist sensitivities

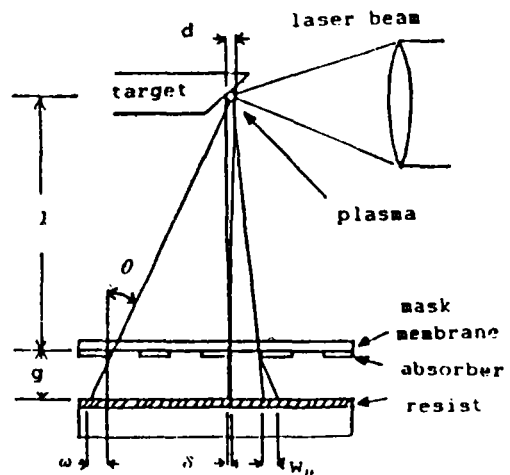


Fig.13. Configuration of laser-plasma X-ray lithography

图13给出用于X光刻的实验排布。

实验参数: Fe靶 ($\lambda \approx 15 \text{ \AA}$), 激光器 Lamde Physik EMG150, ($\lambda = 248\mu m$, 600 mJ/20ns), 靶面功率密度 $3 \times 10^{12} W/cm^2$; 光阻材料: EBR-9。

图14给出EBR-9光阻材料烧深度与曝光时间的关系。

图15给出EBR-9曝光后的图样(掩膜与光阻层间隙为 $20\mu m$)。表明, 在经50次曝光后

已得到线宽为 $50\mu\text{m}$ 的图样。

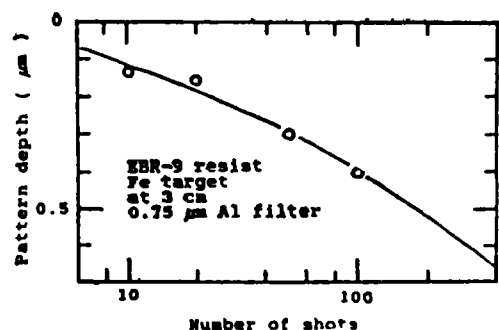


Fig. 14. Exposure curve of resist EBR-9

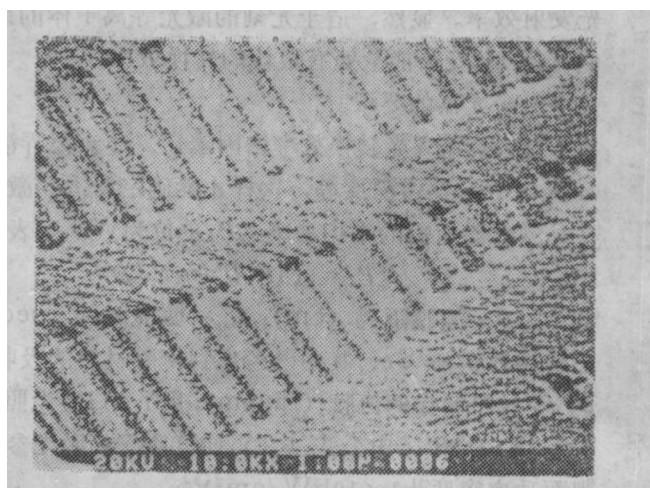


Fig. 15. Printed pattern of $0.5\mu\text{m}$ line & space on EBR-9 with 50 shots exposure

2. X光显微镜

X光生物显微镜对X光源有两个要求：(1) 准单色度，目的是为提高观测样品的反衬度。(2) 其波长要落在C原子的低能区的K吸收区 ($44\text{Å} \sim 280\text{eV}$) 以及O原子的高能K吸收区 ($23\text{Å} \sim 530\text{eV}$) 之间的能带内，即所谓“水窗”。低Z元素的强的发射线谱（例如C原子K壳层跃迁线 $\lambda = 33.7\text{Å}$ ）是最佳的源。迄今，已利用两种器件进行这方面的工作。

图16及图17分别给出KrF激光 ($100\text{J}/50\text{ns}$, 靶面功率密度 $I = 10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$) 辐照Millar靶得到的C的K线发射的角分布以及K线 X光转换效率与激光功率密度的关系。

另一类代表性的工作是用调 QYAG 器件 ($1.06\mu\text{m}$, $0.5\text{J}/8\text{ns}$, 20Hz), 靶面功率密度 $I = 2 \times 10^{12}\text{W}/\text{cm}^2$ 。采用圆柱状靶, 经若干次照射后由步进电机驱动更换新的位置。实验中待检物为无支撑型金箔波带片。用 PMMA 光阻材料记录, 约需 10^8 实现小于 $0.3\mu\text{m}$ 的分辨。

理论分析表明：在水窗区的X光子能量通量要达到 $\sim 10\text{mJ}/\text{cm}^2$ 才足以将含氢样品在光阻材料（例如PMMA）上记录成像。这相当于对样品到源距离为 2cm 的接触显微镜, 要求的亮度为 $0.04\text{J}/\text{sr}$ 。

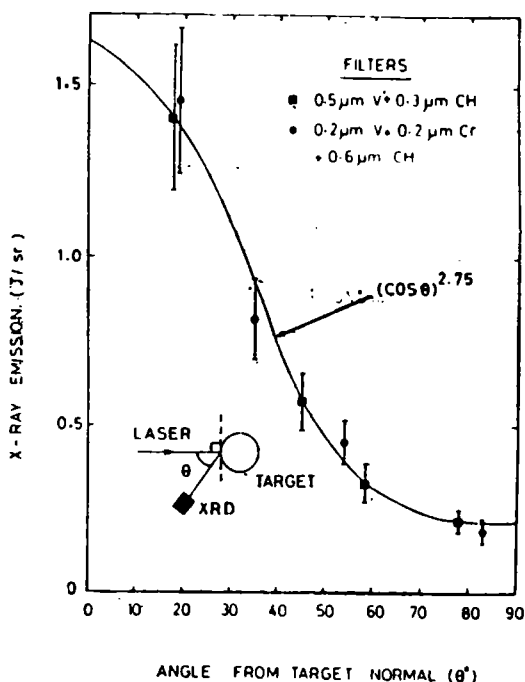


Figure 16. Water-window X-ray yield as a function of angle to the target. KrF laser energy = 100J . $I = 10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$

根据C原子K线的X光转换效率（当靶面激光功率密度 $I = 10^{13} \text{W/cm}^2$ 时，在与靶面法线为 20° 的位置上，这种效率约为25%），这要求KrF激光的能量约为 $\sim 10 \text{J}$ 。

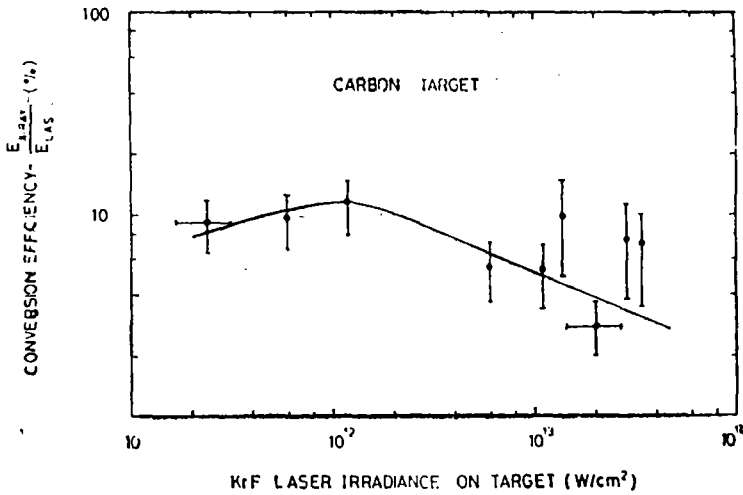


Figure 17. Conversion efficiency from KrF laser light to water window X-ray as a function of laser irradiance for carbon targets

参 考 文 献

- [1] M.Chaker et al., Proceedings of SPIE, 831, 1987
- [2] T.Tomie et al., Proceedings of SPIE, 831, 1987
- [3] F.O'Neill et al., Proceedings of SPIE, 831, 1987
- [4] I.C.E.Turcu et al., Proceedings of SPIE, 831, 1987
- [5] R.W.Eason et al., Proceedings of SPIE, 831, 1978
- [6] P.Alaterre et al., Phys. Rev. A., 34, No. 5, 1986

Laser Plasma X-ray Source and Its Applications

Chen Shisheng

Abstract

The principles and current research results of laser produced high temperature plasma are shortly reviewed. X-ray radiation from such plasma and the dependence of X-ray radiation on target materials and laser parameters (such as power pulse width, wavelength, etc.) are described. The applications of laser plasma as X-ray source in X-ray lithography, X-ray microscopy are discussed.