



## 双激光脉冲打靶形成Gd等离子体的极紫外光谱辐射

谢卓 温智琳 司明奇 窦银萍 宋晓伟 林景全

### Characteristics of extreme ultraviolet emission from Gd plasma produced by dual pulse laser

Xie Zhuo Wen Zhi-Lin Si Ming-Qi Dou Yin-Ping Song Xiao-Wei Lin Jing-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 035202 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211450

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211450>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 桌面飞秒极紫外光原子超快动力学实验装置

A tabletop experimental system for investigating ultrafast atomic dynamics based on femtosecond extreme ultraviolet photons

物理学报. 2020, 69(23): 234208 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201035>

#### 纳秒脉冲激光诱导空气等离子体的近红外辐射特性

Near infrared characteristics of air plasma induced by nanosecond laser

物理学报. 2020, 69(2): 029502 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190753>

#### 激光等离子体光丝中太赫兹频谱的调控

Control of the terahertz spectra generated from laser induced plasma

物理学报. 2020, 69(2): 024205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191200>

#### 飞秒激光引导高压放电下的SF<sub>6</sub>等离子体时间分辨光谱特性

Time-resolved spectral characteristics of SF<sub>6</sub> plasma under femtosecond laser-guided high-voltage discharge

物理学报. 2020, 69(18): 185201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200636>

#### 用于激光等离子体中脉冲强磁场产生的电感耦合线圈

Optimization of pulsed intense magnetic field device for laser plasma experiment via inductively coupled coil

物理学报. 2021, 70(16): 165202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210441>

#### 气体压强对纳秒激光诱导空气等离子体特性的影响

Effect of ambient gas pressure on characteristics of air plasma induced by nanosecond laser

物理学报. 2020, 69(5): 057401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191540>

# 双激光脉冲打靶形成 Gd 等离子体的极紫外光谱辐射\*

谢卓<sup>1)</sup> 温智琳<sup>1)</sup> 司明奇<sup>1)</sup> 窦银萍<sup>1)†</sup> 宋晓伟<sup>1)</sup> 林景全<sup>1)2)‡</sup>

1) (长春理工大学物理学院, 长春 130022)

2) (长春理工大学, 吉林省超快与极紫外光学重点实验室, 长春 130022)

(2021 年 8 月 7 日收到; 2021 年 9 月 16 日收到修改稿)

高端芯片制造所需要的极紫外光刻技术位于我国当前面临 35 项“卡脖子”关键核心技术之首. 高转换效率的极紫外光源是极紫外光刻系统的重要组成部分. 本文通过采用双激光脉冲打靶技术实现较强的 6.7 nm 极紫外光输出. 首先, 理论计算  $\text{Gd}^{18+}$ — $\text{Gd}^{27+}$  离子最外层 4d 壳层的 4p-4d 和 4d-4f 能级之间跃迁、以及  $\text{Gd}^{14+}$ — $\text{Gd}^{17+}$  离子最外层 4f 壳层的 4d-4f 能级之间跃迁对波长为 6.7 nm 附近极紫外光的贡献. 其后开展实验研究, 结果表明, 随着双脉冲之间延时的逐渐增加, 波长为 6.7 nm 附近的极紫外光辐射强度呈现先减弱、后增加、之后再减弱的变化趋势, 在双脉冲延时为 100 ns 处产生的极紫外光辐射最强. 并且, 在延时为 100 ns 处产生的光谱效率最高, 相比于单脉冲激光产生的光谱效率提升了 33%. 此外, 发现双激光脉冲打靶技术可以有效地减弱等离子体的自吸收效应, 获得的 6.7 nm 附近极紫外光谱宽度均小于单激光脉冲打靶的情形, 且在脉冲延时为 30 ns 时刻所产生的光谱宽度最窄, 约为单独主脉冲产生极紫外光谱宽度的 1/3. 同时, Gd 极紫外光谱的变窄提高了波长为 6.7 nm (0.6% 带内) 附近的光谱利用效率.

**关键词:** 极紫外光源, 双脉冲, 激光 Gd 等离子体, 光谱效率

**PACS:** 52.38.-r, 52.59.Px

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211450

## 1 引言

在显微成像、芯片制造和材料分析等领域, 激光等离子体极紫外 (extreme ultraviolet, EUV) 光源具有重要作用<sup>[1–3]</sup>. 尤其是输出波长为 13.5 nm 的 Sn 靶激光等离子体 EUV 光源<sup>[4–6]</sup>, 该波长正好处于 Mo/Si 多层膜反射峰附近, 其反射率高达 70%<sup>[7]</sup>. 可应用于高端芯片制造所用的极紫外光刻技术中, 实现 7 nm 甚至更小光刻节点芯片的制造.

为了推进纳米制造中光刻技术的进一步发展,

研究人员正在努力开发光刻节点小于 7 nm 甚至更小尺寸节点器件的曝光方法. 根据瑞利公式可知<sup>[8]</sup>, 减小曝光波长是一种有效的途径, 即利用高 Z (原子序数) 元素实现短于 10 nm 波长的输出<sup>[9]</sup>. 研究发现稀土金属 Gd 元素具有与金属 Sn 相似的原子结构, 在波长为 6.7 nm 附近可产生强烈的极紫外光辐射<sup>[10]</sup>. 同时, La/B<sub>4</sub>C 多层膜反射镜在波长为 6.7 nm (0.6% 带宽) 处的反射率约为 40%, 理论上可高达 70%<sup>[11]</sup>. 以上特性使 Gd 靶 6.7 nm 极紫外光具有成为实现更小节点器件所需光源的有力候选者.

\* 国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 62005021, 62105040)、国家自然科学基金 (批准号: 62175018)、重庆市自然科学基金 (批准号: cstc2021jcyj-msxmX0735)、吉林省科技发展计划重点研发项目 (批准号: 20200401052GX)、吉林省教育厅项目 (批准号: JJKH20210799KJ) 和吉林省超快与极紫外光学重点实验室 (批准号: YDZJ202102CXJD028) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: douzi714@126.com

‡ 通信作者. E-mail: linjingquan@cust.edu.cn

基于以上原因, 研究人员开展大量的实验对激光等离子体 6.7 nm 极紫外光源进行研究. Yoshida 等<sup>[12]</sup>采用球型靶材来产生极紫外光源, 产生的最大极紫外转换效率是平面靶的 2 倍. 同时, 该研究组采用多脉冲激光辐照固体靶材的方法来抑制等离子体膨胀导致的能量损失, 进而增强极紫外辐射强度<sup>[13]</sup>. Cummins 等<sup>[14]</sup>采用纳秒、皮秒和飞秒三种不同脉冲激光来烧蚀固体钨靶进行实验研究, 发现皮秒脉冲产生的极紫外转换效率要高于其他两种. Yin 等<sup>[15]</sup>研究发现当激光脉冲宽度从几纳秒减小到几百皮秒过程中, 产生的 6.7 nm 光谱峰位置向长波方向移动. Wezyk 等<sup>[10]</sup>提出  $\text{Mg}_{65}\text{Cu}_{25}\text{Gd}_{10}$  合金靶材, 该靶材的熔点小于 500 °C, 实现可循环重复的液滴靶和产生波长在 6.7 nm 附近的极紫外光来满足光刻等领域的要求. 国内 Xu 等<sup>[16]</sup>和 Wang 等<sup>[17]</sup>利用激光辅助放电等离子体的方法开展了极紫外光源的研究, 在波长为 6.7 nm 附近获得了较强的极紫外光辐射输出. 此外, 激光等离子体的不透光效应严重影响了极紫外向外辐射<sup>[18]</sup>. 等离子体中的离子分布和密度在极紫外光透过等离子体向外辐射过程中起到关键的作用. 然而, 离子的分布依赖于实验过程中的激光参数和靶材参数. 对参数的优化可实现光学薄等离子体和获得较高的 6.7 nm 极紫外转换效率. Higashiguchi 等<sup>[19]</sup>利用  $\text{CO}_2$  和 Nd:YAG 激光器分别作为极紫外光的驱动光源, 由于  $\text{CO}_2$  激光 (10.6  $\mu\text{m}$ ) 的临界密度  $n_{\text{cr}} \propto \lambda_L^{-2}$  远小于 Nd:YAG 激光 (1.06  $\mu\text{m}$ ) 情况,  $\text{CO}_2$  激光作为驱动光源时可产生光学薄等离子体和较强的极紫外光辐射. 同时, 该研究组利用低密度靶来产生极紫外光源减少共振线的产生, 进而抑制了自吸收

效应<sup>[20]</sup>. 双脉冲技术也是抑制自吸收效应的方法之一<sup>[19]</sup>, 采用主脉冲激光对预脉等离子体再次加热的方式, 通过控制双脉冲之间的延时、预脉冲波长以及能量可获得高的转换效率的光源<sup>[21–23]</sup>. 目前为止, 在双脉冲实验中以 Sn 和 Li 元素为靶材的实验研究较多, Gd 靶的双脉冲实验尚少. Dou 等<sup>[24]</sup>采用双脉冲来减缓 Gd 离子的动能, 结果表明双脉冲情况下产生的离子动能是单脉冲的 1/18. Higashiguchi 等<sup>[19]</sup>采用双脉冲烧蚀低密度靶产生的 6.7 nm 极紫外的转换效率相比于固体靶增强了 1.6 倍. 但是 Gd 靶双激光脉冲打靶形成等离子体极紫外光谱辐射特性的研究尚少, 有必要进一步对双激光脉冲打靶下 Gd 光谱的辐射特性进行研究.

本文利用平像场光栅光谱仪对双激光脉冲打靶形成 Gd 等离子体的极紫外光谱辐射进行研究. 首先, 利用 Cowan 程序对不同 Gd 离子的自发跃迁概率进行理论计算, 并与实验曲线进行对比. 其次, 采用双激光脉冲打靶技术获得不同延时下的波长为 6.7 nm 的极紫外光谱以及对应辐射强度的变化规律. 此外, 对不同延时下产生的 Gd 靶极紫外光谱宽度进行了研究. 最后, 对双激光脉冲打靶形成 Gd 等离子体极紫外的光谱效率进行了研究.

## 2 实验装置

双激光脉冲打靶形成 Gd 等离子体的极紫外光谱辐射的实验装置如图 1 所示. 实验采用重复频率为 10 Hz、脉宽为 8 ns、输出波长分别为 532 nm (Continuum, Surelite II, 最大能量为 250 mJ) 和 1064 nm (Continuum, Powerlite Precision II, 最大

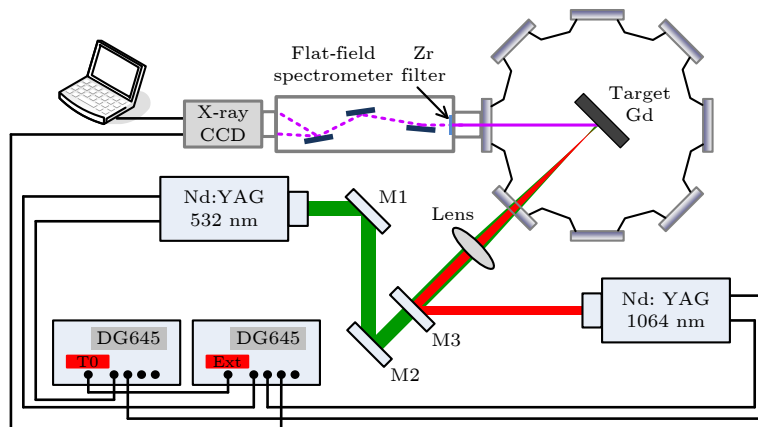


图 1 双激光脉冲打靶形成 Gd 等离子体的极紫外光谱辐射实验装置图

Fig. 1. Experimental setup for the characteristics of EUV emission from Gd plasma produced by dual laser.

能量为 1 J) 的两台激光器作为产生极紫外光源所用的预-主脉冲激光光源. 两光束分别经过 M1 (532 nm, 45°高反镜)、M2 (532 nm, 22.5°高反镜) 和 M3 (1064 nm, 22.5°高反和 532 nm 高透镜) 反射镜后合束, 最终通过焦距为 400 mm 的平凸透镜聚焦于固定在三维平移台的 Gd 靶表面. 通过移动三维平移台的上下、左右来更换靶材的位置, 以保证每发脉冲都能辐照在全新的靶材表面. 实验过程中, 焦斑大小的测量是使用单发脉冲激光聚焦在平面靶材上面, 利用金相显微镜对烧蚀区域进行测量来获得焦斑的直径, 进而得到脉冲激光功率密度值.

采用平像场光栅光谱仪对双激光脉冲形成 Gd 等离子体极紫外光谱辐射进行测量. 极紫外光经过厚度为 200 nm 的金属 Zr 膜、球面镜、柱面镜和狭缝, 最后以 87°角入射至中心刻线密度为 1200 l/mm 的变栅距凹面光栅上, 所获得的衍射光成像到背向照明的 X-ray CCD (Andor, iKon-MSO) 上面. 利用 Si 光谱对光谱仪进行标定, 光谱仪的分辨率约为 0.02 nm.

采用数字延时发生器 (Stanford Research, DG645) 对预、主脉冲激光和 X-ray CCD 进行同步控制, 其精度小于 1 ns. 整个实验过程中, 均采用单发模式, 真空度约为  $10^{-3}$  Pa.

### 3 实验结果与讨论

首先采用输出波长为 1064 nm、激光功率密度为  $2 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> 的脉冲激光单独辐照固体 Gd 靶, 对其产生的极紫外光谱辐射特性进行研究, 典型的 Gd 靶激光等离子体极紫外光谱如图 2 黑色曲线所示. 从图 2 可以看出, 在波长为 6.7 nm 附近产生了强烈的辐射, 其主要由不可分辨跃迁矩阵 (unresolved transition arrays, UTAs) 所主导<sup>[25]</sup>. 同时, 在波长 6.7—7.0 nm 范围内, 由于等离子体对于极紫外光来说透明度较低, 等离子体内部产生的极紫外光在向外辐射过程中会被等离子体吸收而产生凹陷现象<sup>[18]</sup>.

为了进一步了解不同价态的 Gd 离子对 6.7 nm 极紫外光辐射的贡献, 采用组态之间相互作用 Hartree-Fock 模型的 Cowan 程序<sup>[26]</sup> 计算了 Gd<sup>14+</sup>—Gd<sup>27+</sup> 离子自发辐射速率与波长之间的关系. 由于收缩因子 (Slater scaling) 对计算结果的影响较为

明显, 文中采用的收缩因子为 0.90, 自旋-轨道参数不变. 将不同离子情况下计算得到的自发辐射速率以相同的量级进行修改, 并与 Gd 靶极紫外光谱比较, 结果如图 2 中红色曲线所示. 可知, 辐射波长在 6.7 nm 附近的极紫外光是由 Gd<sup>18+</sup>—Gd<sup>27+</sup> 离子最外层 4d 壳层的 4p-4d 和 4d-4f 能级之间跃迁, 以及 Gd<sup>14+</sup>—Gd<sup>17+</sup> 离子最外层 4f 壳层的 4d-4f 能级之间的跃迁两者所贡献. 辐射波长在 6.8—7.5 nm 之间的一些可辨识的极紫外光谱峰主要由 Gd<sup>14+</sup>—Gd<sup>16+</sup> 离子 4f-5d 和 4f-5g 能级之间的跃迁所贡献.

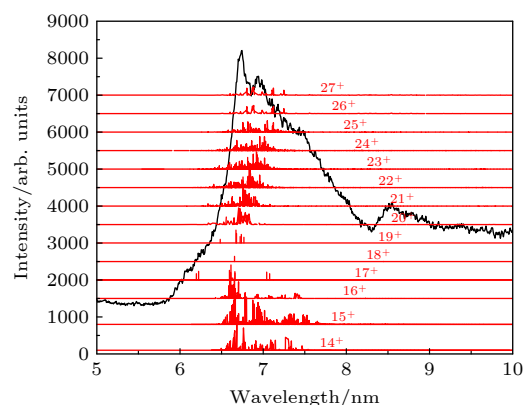


图 2 Gd 靶激光等离子体极紫外光辐射实验曲线 (黑色) 和理论计算 Gd 不同离子价态自发辐射速率与波长之间的关系 (红色). 图中的 14<sup>+</sup>—27<sup>+</sup> 表示 Gd 离子价态. Gd<sup>18+</sup>—Gd<sup>27+</sup> 离子的跃迁类型为  $\Delta n = 0, n = 4, 4p^6 4d^m - 4p^5 4d^{m+1} + 4d^{m-1} 4f$  ( $m = 1-10$ ), Gd<sup>14+</sup>—Gd<sup>17+</sup> 离子的跃迁类型为  $\Delta n = 0, n = 4, 4d^{10} 4f^m - 4d^9 4f^{m+1}$  ( $m = 1-4$ ) 和  $\Delta n = 1, n = 4, n = 5, 4d^{10} 4f - 4d^9 4f^{m-1} 5d + 4d^9 4f^{m-1} 5g$  ( $m = 1-4$ )

Fig. 2. Experimental waveform of laser produced Gd plasma EUV emission (black line), and the transition probabilities of Gd<sup>14+</sup>—Gd<sup>27+</sup> computed with the Cowan code including the effects of CI (red line). The transition type of Gd<sup>18+</sup>—Gd<sup>27+</sup> is  $\Delta n = 0, n = 4, 4p^6 4d^m - 4p^5 4d^{m+1} + 4d^{m-1} 4f$  ( $m = 1-10$ ). And the transition type of Gd<sup>14+</sup>—Gd<sup>17+</sup> is  $\Delta n = 0, n = 4, 4d^{10} 4f^m - 4d^9 4f^{m+1}$  ( $m = 1-4$ ), and  $\Delta n = 1, n = 4, n = 5, 4d^{10} 4f - 4d^9 4f^{m-1} 5d + 4d^9 4f^{m-1} 5g$  ( $m = 1-4$ ).

接下来, 对双激光脉冲打靶形成的 Gd 等离子体极紫外光谱辐射特性进行研究. 在双脉冲实验中, 波长为 532 nm 的激光所对应的等离子体临界密度要高于波长为 1064 nm 激光情况. 如果采用波长为 532 nm 激光作为预脉冲, 1064 nm 激光作为主激光, 当预等离子体密度达到主脉冲激光所对应的临界密度时, 此时主脉冲激光能量可有效地注入至预等离子体中来加热预等离子体, 利于产生 6.7 nm 光转化的离子, 进而增强极紫外光辐射. 因



此, 采用波长为 532 nm 激光作为预脉冲, 1064 nm 激光作为主激光来进行双激光脉冲打靶形成 Gd 等离子体极紫外光谱辐射特性的实验, 结果如图 3 所示. 图 3(a) 为主脉冲激光功率为  $2 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> 和预脉冲激光功率为  $2.2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> (不足以产生极紫外光源) 情况下, 不同延时所产生的极紫外光谱曲线图. 从图 3(a) 可以看出, 波长为 6.7 nm 附近的极紫外光辐射强度随着延时的增加而发生变化, 其极紫外光辐射强度与不同延时的关系如图 3(b) 所示, 图中红线所示为单独主脉冲激光产生的 6.7 nm 附近极紫外光辐射强度, 黑线所示为不同延时下双脉冲激光产生的 6.7 nm 附近极紫外光辐射强度. 从图 3(b) 可知, 在双脉冲情况下, 极紫外光辐射强度在延时 10—30 ns 范围内快速下降, 随后在延时 50—100 ns 范围内强度恢复增加, 在延时进一步从 100 ns 增加至 500 ns 的过程中, 辐射强度再一次下降. 在延时为 100 ns 时, 产生的极紫外光辐射强度最强. 产生该趋势的原因如下: 在延时 10—30 ns 范围内, 532 nm 脉冲激光产生预等离子体初期的密度略小于其对应的临界密度  $4 \times 10^{21}$  cm<sup>-3</sup>, 此时的预等离子体会屏蔽大部分主脉冲 1064 nm 激光能量, 只吸收少部分主脉冲激光能量. 同时, 激光等离子体的辐射是通过电子碰撞激发态产生去激发过程而向外辐射强度, 等离子体的辐射强度与电子密度成正比<sup>[27]</sup>, 而且预等离子体的密度又与双脉冲之间的延时成反比. 因此, 在延时 10—30 ns 范围内极紫外光辐射强度呈现减弱趋势. 随着延时进一步增加, 预等离子体的膨胀程度变得明显, 可增强与主脉冲激光等离子体之间的耦合<sup>[28]</sup>. 此外, 预等离子体密度在逐渐减少, 当减少至主脉冲激光等离子体所对应的临界密度 ( $1 \times 10^{21}$  cm<sup>-3</sup>) 时, 预等离子体可充分吸收主脉冲能量并对预等离子体进行加热<sup>[29]</sup>, 最终实现较强的极紫外光辐射输出, 正如延时为 100 ns 时产生的极紫外光辐射情形. 在延时从 100 ns 增加至 500 ns 过程中, 预等离子体电子密度逐渐降低, 而等离子体对激光的吸收系数与电子密度的平方成正比, 导致延时在 100—500 ns 范围内产生的预等离子体相对于主脉冲激光来说是透明的, 主脉冲激光可以透过预等离子体与金属 Gd 靶直接作用, 导致只有部分主脉冲激光来加热预等离子体, 剩余部分主脉冲激光与靶材作用, 致使极紫外光辐射强度随着延时的增加而逐渐减弱.

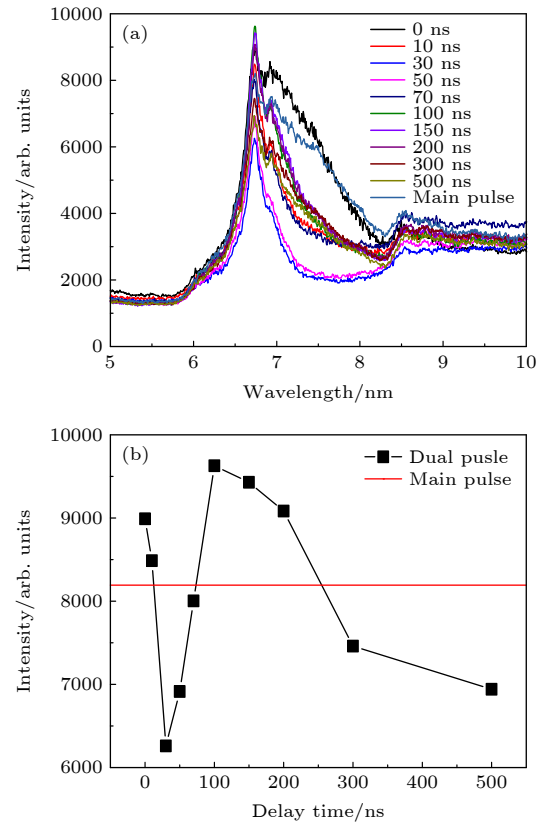


图 3 不同延时下, (a) 6.7 nm 极紫外光辐射曲线以及 (b) 6.7 nm 峰值附近处辐射强度. 主脉冲激光功率为  $2 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>、预脉冲激光功率为  $2.2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>

Fig. 3. (a) The impedance of 6.7 nm EUV spectrum radiation and (b) the radiation intensity of the 6.7 nm peak on the different delay time with the main pulse laser density of  $2 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> and pre-pulse laser density of  $2.2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>.

此外, 发现延时在 10—500 ns 区间内产生的极紫外光谱宽度远小于主脉冲产生的极紫外光谱情况. 对比了延时分别为 30, 100 ns 和主脉冲三种情况下的极紫外光谱曲线的半高宽度. 为了便于对比, 将图 3(a) 中延时为 30 ns 和主脉冲两种情况所产生的极紫外光谱强度调整至与延时为 100 ns 所产生的辐射强度相同, 结果如图 4 所示. 延时为 30 和 100 ns 两种情况下产生的极紫外光谱宽度相近, 但均窄于主脉冲情况, 并且延时为 30 ns 产生的光谱宽度最窄, 约为主脉冲产生宽度的 1/3. Higashiguchi 等<sup>[20]</sup> 实验结果表明采用低密度靶 (10%Gd 含量) 产生的 6.7 nm 极紫外光谱宽度约为 1 nm, 约为本文获得最窄极紫外光谱宽度的 2 倍. Churilov 等<sup>[30]</sup> 利用 Nd:glass 激光烧蚀 Gd 靶获得的极紫外光谱宽度约为 0.1 nm, 为本文获得最窄光谱宽度的 1/4. 综上可知, 我们的实验现象

说明了双脉冲技术可产生光学薄等离子体, 有效地减弱了等离子体的自吸收效应, 增强 6.7 nm 附近的极紫外光输出. 同时, 优化双脉冲之间的延时可以促进利于 6.7 nm 光源的高阶离子的产生, 进而获得较窄的极紫外光谱.

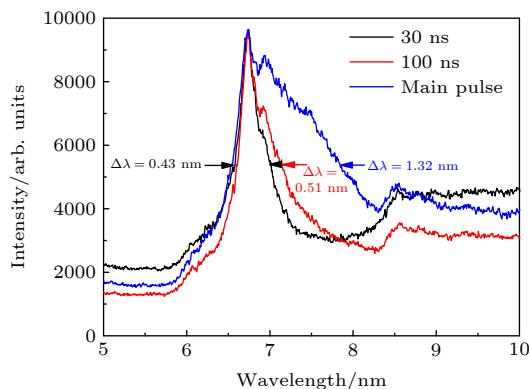


图 4 延时为 30, 100 ns 和主脉冲三种情况下的极紫外光谱宽度对比图

Fig. 4. Comparisons of EUV spectral widths under the delay of 30, 100 ns and main pulse.

根据图 2 的理论计算可知, 不同价态的 Gd 离子所对应的波长范围不同.  $Gd^{18+}$  附近的离子所对应的波长范围最窄, 高于  $Gd^{18+}$  和低于  $Gd^{18+}$  的离子所对应波长范围较宽, 并且对长波方向的贡献较多. 在改变双脉冲之间延时过程中, 等离子体的电子温度和电子密度均在改变, 进而产生的离子阶也发生变化. 根据文献 [31] 可知产生 6.7 nm 对应的理想等离子体参数的电子密度在  $10^{19}$ — $10^{20}$  / $cm^3$ , 电子温度在 100—120 eV. 我们采用 FLYCHK 程序 [32] 理论计算了电子密度为  $10^{19}$  和  $10^{20}$   $cm^{-3}$  条件下, 不同价态的离子丰度与电子温度之间的关系, 如图 5 所示. 根据结果可知, 在各自的电子密度下, 电子温度的逐渐增加导致高阶离子的数量也在增加, 且产生  $Gd^{18+}$  离子及其所对应的电子温度均在 100 eV 左右. 此外, Higashiguchi 等 [33] 的理论计算结果表明, 等离子体的电子温度随着双脉冲延时的增加呈现先快速增加后缓慢减少的趋势, 在延时  $t = 70$  ns 附近电子温度最大. 因此, 结合图 2 的实验结果可知, 在延时为 30 ns 时产生了大量的  $Gd^{18+}$  附近 (对应电子温度为 100 eV 左右) 离子来实现较窄的光谱宽度. 而在其他延时下会产生的  $Gd^{18+}$  附近离子浓度变小, 更高阶次或更低阶次的离子浓度增加, 进而导致产生的极紫外光谱宽度变宽, 如图 4 所示.

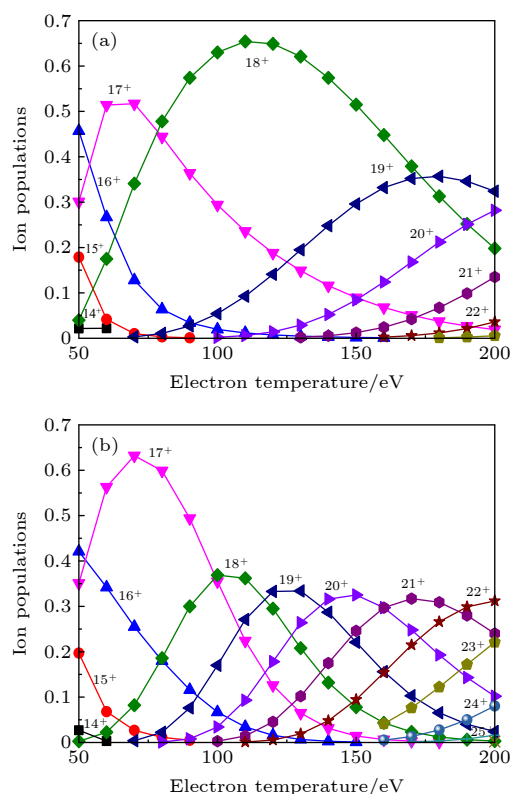


图 5 在电子密度为  $10^{19}$  (a) 和  $10^{20}$   $cm^{-3}$  (b) 条件下, 离子丰度与电子温度之间的关系, 图中的 14+—25+ 表示 Gd 离子阶数

Fig. 5. Ionic populations of Gd plasma as a function of  $T_e$  under the electron density of  $10^{19}$  (a) and  $10^{20}$   $cm^{-3}$  (b). The numbers in the figure are represented the ion stages of Gd plasma.

由图 5 可知, 在有利于 6.7 nm 辐射的电子密度 ( $10^{19}$ — $10^{20}$   $cm^{-3}$ ) 下, 产生  $Gd^{18+}$  离子所对应的电子温度均在 100 eV 左右, 并且  $Gd^{18+}$  离子相对于其他阶离子具有相对高的离子丰度. 但是电子密度为  $10^{19}$  和  $10^{20}$   $cm^{-3}$  两种情况下所产生的  $Gd^{18+}$  离子最大的丰度值不同. 为了说明在延时从 30 ns 增至 100 ns 时  $Gd^{18+}$  离子丰度降低的原因, 计算了电子温度为 100 eV 时  $Gd^{18+}$  离子丰度在电子密度为  $10^{19}$ — $10^{20}$  / $cm^3$  区间的变化 [32], 结果如图 6 所示. 可以看出, 随着电子密度的增加,  $Gd^{18+}$  离子丰度呈现先增加后减少的趋势. 由图 3(b) 实验结果可知, 在延时 30 ns 时产生的极紫外辐射强度比较低, 在延时 100 ns 时产生的极紫外辐射强度比较高. 又因为辐射强度与电子密度的平方成正比, 因此, 在延时 30 ns 时所对应的电子密度较小, 而在延时为 100 ns 时所对应的电子密度较大. 这一双激光脉冲打靶下的电子密度随延时的变化与 Favre 等 [34] 在双脉冲下高 Z 元素靶形成等离子体电子温

度变化趋势一致. 结合图 6 可知, 在延时 30 ns 时对应着相对高的  $\text{Gd}^{18+}$  离子丰度, 进而可产生较窄的光谱. 而在延时 100 ns 时对应着相对低的  $\text{Gd}^{18+}$  离子, 并产生相对于 30 ns 情况下较宽的光谱.

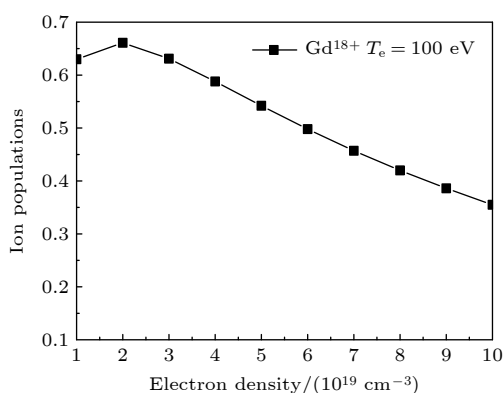


图 6 固定电子温度为 100 eV 条件下,  $\text{Gd}^{18+}$  离子丰度与电子密度之间的关系

Fig. 6. The  $\text{Gd}^{18+}$  ion population dependence of electron density under the electron temperature of 100 eV.

最后, 对不同延时下产生的光谱效率 (spectral efficiency, SE) 进行研究. Aota 和 Tomie<sup>[27]</sup> 的研究结果表明, 光谱效率是影响获得极紫外高转换效率的一个重要因素, 对其进行研究可为获得高转换效率的极紫外光源奠定基础. 我们定义波长 6.7 nm 附近的 0.6% 带内辐射与全宽带辐射的比值称为光谱效率, 本文中计算光谱效率所对应的谱线宽度波长范围为 5—10 nm. 实验结果如图 7 所示, 发现双脉冲情况下产生的光谱效率均大于单脉冲情况, 并且随着双脉冲延时的增加光谱效率基本

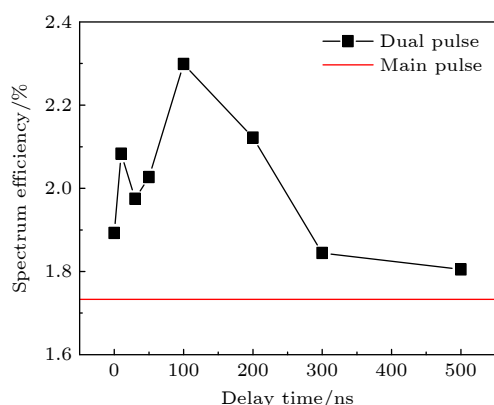


图 7 不同延时下, 波长 6.7 nm 左右的 0.6% 带内的光谱效率

Fig. 7. Spectral efficiency of the 0.6% in band radiation around 6.7 nm to the total radiation between 5—10 nm under the main pulse and dual pulse with different delay time.

呈现先增加后减少的趋势, 在延时为 100 ns 时产生的极紫外光谱效率最大, 相比于单脉冲来说, 该延时所产生的光谱效率提升了 33%. 此外, 较高的光谱效率也表明, 光源具有较低极紫外光离带热辐射, 这样, 可减弱对光刻机中光学元件的损坏<sup>[35]</sup>.

## 4 结 论

本文对双脉冲激光打靶形成 Gd 等离子体极紫外光谱辐射特性进行了研究. 实验结果表明, 在波长 6.7 nm 附近产生了强的辐射, 其主要由不可分辨跃迁矩阵所主导. 采用组态之间相互作用 Hartree-Fock 模型的 Cowan 程序计算了  $\text{Gd}^{14+}$ — $\text{Gd}^{27+}$  离子自发辐射速率与波长之间的关系. 辐射波长在 6.7 nm 附近的极紫外光是由  $\text{Gd}^{18+}$ — $\text{Gd}^{27+}$  离子最外层 4d 壳层的 4p-4d 和 4d-4f 能级之间跃迁, 以及  $\text{Gd}^{14+}$ — $\text{Gd}^{17+}$  离子最外层 4f 壳层的 4d-4f 能级之间的跃迁两者所贡献. 双脉冲实验结果表明, 由于预等离子体的密度和膨胀体积随着延时的增加而发生变化, 导致 6.7 nm 附近的极紫外辐射强度随着延时的增加呈现先减弱、后增加、之后再减弱趋势, 在延时为 100 ns 处产生的 6.7 nm 极紫外光辐射强度最强. 此外, 发现双脉冲技术可以有效地减弱等离子体的自吸收效应, 在延时 10—500 ns 区间内产生的极紫外光谱宽度均小于单独主脉冲情形, 延时为 30 ns 所产生的宽度最窄, 约为单独主脉冲产生极紫外光谱宽度的 1/3. 最后, 6.7 nm 处的光谱效率结果表明, 双脉冲条件下所产生的光谱效率均高于单脉冲情形, 而且在延时为 100 ns 时光谱效率最高, 相比于单脉冲来说, 该延时所产生的光谱效率提升了 33%. 同时该光源具有较低的极紫外光离带热辐射, 可减弱对光刻机中光学元件的损坏. 本研究可为我国开发高端芯片制造所需的极紫外光源奠定基础.

## 参考文献

- [1] Schmitz C, Wilson D, Rudolf D, Wiemann C, Plucinski L, Riess S, Schuck M, Hardtgen H, Schneider C M, Tautz F S, Juschkin L 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 234101
- [2] Barkusky F, Bayer A, Döring S, Flöter B, Großmann P, Peth Cn, Reese M, Mann K 2010 *The International Society for Optical Engineering*. Prague, Czech Republic April 20, 2009 p7361
- [3] Wagner C, Harned N 2010 *Nat. Photonics* **4** 24
- [4] Torretti F, Sheil J, Schupp R, Basko M M, Bayraktar M,

- Meijer R A, Witte S, Ubachs W, Hoekstra R, Versolato O O, Neukirch A J, Colgan J 2020 *Nat. Commun.* **11** 1
- [5] Torretti F, Liu F, Bayraktar M, Scheers J, Bouza Z, Ubachs W, Hoekstra R, Versolato O O 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 055204
- [6] Versolato O O 2019 *Plasma Sources Sci. Technol.* **28** 083001
- [7] Huang Q S, Medvedev V, Kruijs R V D, Yakshin A, Louis E, Bijkerk F 2017 *Appl. Phys. Rev.* **4** 011104
- [8] Wu B Q, Kumar A 2007 *J. Vac. Sci. Technol., B* **25** 1743
- [9] Sasaki A, Nishihara K, Sunahara A, Furukawa H, Nishikawa T, Koike F 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 231501
- [10] Wezyk A V, Andrianov K, Wilhein T, Bergmann K 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 505202
- [11] Chkhalo N I, Künstner S, Polkovnikov V N, Salashchenko N N, Schäfers F, Starikov S D 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 011602
- [12] Yoshida K, Fujioka S, Higashiguchi T, Ugomori T, Tanaka N, Kawasaki M, Suzuki Y, Suzuki C, Tomita K, Hirose R, Eshima Takeo, Ohashi H, Nishikino M, Scally E, Nishimura H, Azechi H, O'Sullivan G 2016 *J. Phys. Conf. Ser.* **688** 012046
- [13] Yoshida K, Fujioka S, Higashiguchi T, Ugomori T, Tanaka N, Ohashi H, Kawasaki M, Suzuki Y, Suzuki C, Tomita K, Hirose R, Ejima T, Nishikino M, Sunahara A, Scally E, Li B W, Yanagida T, Nishimura H, Azechi H, O'Sullivan G 2014 *Appl. Phys. Express.* **7** 086202
- [14] Cummins T, Otsuka T, Yugami N, Jiang W H, Endo A, Li B W, O'Gorman C, Dunne P, Sokell E, O'Sullivan G, Higashiguchi T 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 061118
- [15] Yin L, Wang H C, Reagan B A, Baumgarten C, Gullikson E, Berrill M, Shlyaptsev V N, Rocca J J 2016 *Phys. Rev. Appl.* **6** 034009
- [16] Xu Q, Tian H, Zhao Y, Wang Q 2019 *Symmetry* **11** 658
- [17] Wang J W, Wang X B, Zuo D L, Zakharov V S 2021 *Opt. Laser Technol.* **138** 106904
- [18] Fujioka S, Nishimura H, Nishihara K, Sasaki A, Sunahara A, Okuno T, Ueda N, Ando T, Tao Y Z, Shimada Y, Hashimoto K, Yamaura M, Shigemori K, Nakai M, Nagai K, Norimatsu T, Nishikawa T, Miyana N, Izawa Y, Mima K 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 235004
- [19] Higashiguchi T, Li B W, Suzuki Y, Kawasaki M, Ohashi H, Torii S, Nakamura D, Takahashi A, Okada T, Jiang W H, Miura T, Endo A, Dunne P, O'Sullivan G, Makimura T 2013 *Opt. Express* **21** 031837
- [20] Higashiguchi T, Otsuka T, Yugami N, Jiang W H, Endo A, Li B W, Kilbane D, Dunne P, O'Sullivan G 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 191502
- [21] Freeman J R, Harilal S S, Hassanein A 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 083303
- [22] Higashiguchi T, Dojyo N, Hamada M, Sasaki W, Kubodera S 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 201503
- [23] Freeman J R, Harilal S S, Hassanein A, Rice B 2013 *Appl. Phys. A* **110** 853
- [24] Dou Y P, Sun C K, Liu C Z, Gao J, Hao Z Q, Lin J Q 2014 *Chin. Phys. B* **23** 075202
- [25] Kilbane D, O'Sullivan G 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 104905
- [26] Cowan R D 1981 *The Theory of Atomic Structure and Spectra* (University of California Press) pp619–625
- [27] Aota T, Tomie T 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 015004
- [28] Hassanein A, Sizyuk T, Sizyuk V, Harilal S S 2011 *J. Micro/Nanolithgr. MEMS MOEMS* **10** 033002
- [29] Higashiguchi T, Kawasaki K, Sasaki W, Kubodera S 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 161502
- [30] Churilov S S, Kildiyarova R R, Ryabtsev A N, Sadovsky S V 2009 *Phys. Scr.* **80** 045303
- [31] Li B W, Dunne P, Higashiguchi T, Otsuka T, Yugami N, Jiang W H, Endo A, O'Sullivan G 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 231502
- [32] National Institute of Standards and Technology <https://niste.nist.gov/FLY/> [2018-8]
- [33] Higashiguchi T, Yamaguchi M, Otsuka T, Nagata T, Ohashi H, Li B W, D'Arcy R, Dunne P, O'Sullivan G 2014 *Rev. Sci. Instrum.* **85** 096102
- [34] Favre A, Morel V, Bultel A, Godard G, Idrhacen S, Benyagoub A, Monnet I, Semerok A, Dinescu Maria, Markelj S, Magaud P, Grisolia C 2021 *Fusion. Eng. Des.* **168** 112364
- [35] Beyene G A, Tobin I, Juschk L, Hayden P, O'Sullivan G, Sokell E, Zakharov V S, Zakharov S V, O'Reilly F 2016 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49** 225201



# Characteristics of extreme ultraviolet emission from Gd plasma produced by dual pulse laser<sup>\*</sup>

Xie Zhuo<sup>1)</sup> Wen Zhi-Lin<sup>1)</sup> Si Ming-Qi<sup>1)</sup> Dou Yin-Ping<sup>1)†</sup>  
Song Xiao-Wei<sup>1)</sup> Lin Jing-Quan<sup>1)2)‡</sup>

<sup>1)</sup> (*School of Physics, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China*)

<sup>2)</sup> (*Key Laboratory of Ultrafast and Extreme Ultraviolet Optics of Jilin Province, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China*)

( Received 7 August 2021; revised manuscript received 16 September 2021 )

## Abstract

The extreme ultraviolet (EUV) lithography technology, which is required for high-end chip manufacturing, is the first of 35 “neck stuck” key core technologies that China is facing currently. The EUV source with high conversion efficiency is an important part of EUV lithography system. The experiment on dual-pulse irradiated Gd target is carried out to realize the stronger 6.7 nm EUV emission output. Firstly, we compute the contribution of transition arrays of the form 4p-4d and 4d-4f from their open 4d subshell in charge states  $\text{Gd}^{18+}$ – $\text{Gd}^{27+}$ , and transition arrays of the form 4d-4f from their open 4d subshell in charge states  $\text{Gd}^{14+}$ – $\text{Gd}^{17+}$  on the near 6.7 nm EUV source. Subsequently, the experimental results of the dual pulse laser irradiated Gd target show that the intensity of 6.7 nm peak EUV emission decreases first, then increases and drops again due to the plasma density decreasing gradually when the delay time between the pre-pulse and main-pulse increases from 0–500 ns. The strongest intensity of 6.7 nm peak EUV emission is generated when the delay time is 100 ns. At the same time, the spectrum efficiency is higher when the delay time is 100 ns, which is 33% higher than that of single pulse laser. In addition, the experimental results show that the half width of EUV spectrum produced by dual pulse in the delay between 10–500 ns is narrower than that of signal laser pulse due to the fact that the method of dual pulse can suppress the self-absorption effect. The half width is the narrowest when the delay is 30 ns, which is about 1/3 time of EUV spectrum width generated by a single pulse. At the same time, the narrowing of Gd EUV spectrum improves the spectral utilization efficiency near 6.7 nm wavelength (within 0.6% bandwidth).

**Keywords:** extreme ultraviolet source, dual pulse laser, laser produce Gd plasma, spectrum efficiency

**PACS:** 52.38.–r, 52.59.Px

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211450

<sup>\*</sup> Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 62005021, 62105040), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 62175018), the Natural Science Foundation of Chongqing, China (Grant No. cstc2021jcyj-msxmX0735), the Key R&D Program of Scientific and Technological Development Plan of Jilin Province, China (Grant No. 20200401052GX), the Department of Education of Jilin Province, China (Grant No. JJKH20210799KJ), and the Key Laboratory of Ultrafast and Extreme Ultraviolet Optics of Jilin Province, China (Grant No. YDZJ202102CXJD028).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [douzi714@126.com](mailto:douzi714@126.com)

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [linjingquan@cust.edu.cn](mailto:linjingquan@cust.edu.cn)