Известия НАН Армении, Физика, т.34, №2, с.81-86 (1999)

УДК 621.3.024.76

ИССЛЕДОВАНИЕ ЛАЗЕРНОЙ ПЛАЗМЫ УГЛЕРОДА И АЛЮМИНИЯ В ВУФ ОБЛАСТИ СПЕКТРА

Г. Ц. НЕРСИСЯН, В. О. ПАПАНЯН

Институт физических исследований НАН Армении,

К. М. ПОХСРАРЯН

НПО "Лазерная техника" при Ереванском государственном университете

(Поступила в редакцию 27 марта 1998 г.)

Исследовано ВУФ излучение лазерной плазмы, образованной в фокусе YAG:Nd лазера со средней мощностью на углеродной и алюминиевой мишенях. Диагностика плазмы возможна благодаря существованию локального термодинамического равновесия, найденного экспериментально. Электронная температура находится с помощью измерения отношений интенсивностей ионных линий. Концентрация электронов измеряется с помощью штарковского уширения линий алюминия. Средняя плотность электронов больше чем 10¹⁷ см⁻³ измерена в горячей зоне плазмы, которая простирается на расстояние 5 мм от поверхности мишени.

Вакуумное ультрафиолетовое (ВУФ) и мягкое рентгеновское излучение лазерной плазмы, образованной при фокусировании лазерного излучения, широко применяется, в частности, в спектроскопии и микроэлектронике [1,2]. Оптимизация работы источника такого излучения требует знания физических процессов, происходящих в лазерной плазме. Важными параметрами такой плазмы являются температура и плотность электронов, которые обычно определяются из спектроскопических измерений в плазме.

Особое место среди мишеней занимают атомные кластеры и большие молекулы, в которых происходит интенсивное поглощение лазерного излучения, обеспечивая тем самым эффективное столкновительное нагревание электронов, образование многозарядных ионов и генерирование высокоэнергетичных фотонов и ионов [3,4]. Так, в работе [5] при фокусировании лазерного излучения в газ, образующийся при испарении пленки С₆₀, наблюдалось жесткое рентгеновское излучение и образование водородоподобных ионов углерода, которые отсутствуют при использовании обычного графита. В работе [6] отмечается перспективность молекулярных соединений в экспериментах по взаимодействию лазерного излучения с веществом, для целей эффективного преобразования лазерного излучения в рентгеновское и ВУФ излучения.

Так как перспективные молекулярные соединения, в частности,

31 2082 4PS/In-Anno

фуллерены и фталоцианины богаты атомами углерода, то имеет смысл подробное изучение углеродной плазмы. Далее, при изготовлении мишеней исследуемое вещество обычно напыляется на какую-нибудь подложку, атомы и ионы материала которой также присутствуют в образующейся плазме. Спектр излучения таких частиц дает дополнительную информацию о лазерной плазме [7]. Выбор чистого апюминия обусловлен тем, что большинство молекулярных мишеней наносятся на алюминиевые подложки.

В данной работе изучены спектры ВУФ излучения лазерной плазмы, образованной на мишенях из углерода и алюминия, и измерены температура (T_e) и плотность (N_e) электронов. Для определения электронной температуры использовалось отношение интенсивностей двух линий, принадлежащих ионам с различными кратностями ионизации. Чувствительность метода повышается благодаря тому, что разность энергий в больцмановском множителе увеличивается на величину энергии ионизации. Штарковское уширение линий сильными локальными электрическими полями в лазерной плазме позволяет определить электронную плотность.

Экспериментальная установка подробно описана в работах [1,8]. Лазерная плазма создается с помощью YAG:Nd лазера с длительностью импульса 10 нс и плотностью мощности излучения 10¹⁰ Вт/см² при фокусировке (диаметр фокусного пятна около 100 мкм) на вращающуюся мищень из углерода или алюминия. Спектр лазерной плазмы регистрировался в диапазоне длин волн 50 + 270 нм с помощью вакуумного монохроматора ВМР-2, который со щелями менее 100 мкм обеспечивал аппаратное уширение ~ 0,1 нм. В установке поддерживался высокий вакуум 2·10⁻⁵ Тор.

Для определения T_e углеродной плазмы использовалось отношение интенсивностей линий $C^{3+} 253$ нм и $C^{2+} 229,7$ нм. Как отмечается в [9], при электронной плотности $N_e > 10^{17}$ см⁻³ (экспериментальное определение N_e см. ниже) верхние уровни линий C^{3+} и C^{2+} находятся в локальном термодинамическом равновесии (ЛТР) по отношению к ионам C^{4+} и C^{3+} , соответственно. В приближении однородной нестационарной плазмы время установления ЛТР равно 1,3 нс. В этом приближении отношение интенсивностей линий иона $C^{3+}(I')$ и $C^{2+}(I)$ равно [9]

$$\frac{I'}{I} = \frac{fg'g_0}{fgg_0''} \left(\frac{\lambda}{\lambda'}\right)^3 (4\pi^{1.5}a_0^3 N_e) \left(\frac{E_H}{kT_e}\right)^{1.5} \frac{S}{\alpha + N_e\alpha_3} \frac{S'}{\alpha' + N_e\alpha_3'} \exp\left(\frac{E_{\infty} - E' + E}{kT_e}\right), \quad (1)$$

где f,g,λ и f',g',λ' – силы осцилляторов, статистические веса и длины волн излучения линий ионов C²⁺ и C³⁺, соответственно, g_0,g_0'' – статистические веса основных состояний для ионов в более низком и последующем более высоком состоянии ионизации, соответственно, S,α,α_3 и S',α',α'_3 – коэффициенты ионизации, излучательной и трехчастичной рекомбинаций двух ионизационных состояний, E_{∞} – энергия ионизации иона с низкой степенью ионизации, E',E – энергии возбуждения верхних уровней линий ионов, a_0 – радиус первой боровской орбиты, Ен - энергия ионизации атома водорода.

Электронная температура определяется решением уравнения (1) после измерения отношения интенсивностей в спектре. Полуэмпирические формулы для коэффициентов S, a, a, имеют следующий вид [10]:

$$S = \frac{9 \cdot 10^{-6} \xi_z \left(\frac{T_e}{E_{\infty}}\right)^{0.5}}{E_{\infty}^{1.5} \left(4,88 + \frac{T_e}{E_{\infty}}\right)} \exp\left(\frac{T_e}{E_{\infty}}\right) \text{ cm}^3 \cdot \text{c}^{-1}, \qquad (2)$$

$$\alpha = 5.2 \cdot 10^{-14} \left(\frac{E_{\infty}}{T_{e}} \right)^{0.5} Z \left[0.429 + 0.5 \lg \left(\frac{E_{\infty}}{T_{e}} \right) + 0.469 \left(\frac{T_{e}}{E_{\infty}} \right)^{0.5} \right] \text{ cm}^{3} \cdot \text{c}^{-1} , (3)$$

$$\alpha_3 = 2,97 \cdot 10^{-27} \frac{\xi_Z}{T_e} E_{\infty}^2 \left(4,88 + \frac{T_e}{E_{\infty}} \right) c^{-1}, \qquad (4)$$

где ξ_Z – число электронов на внешней оболочке иона с зарядом Z. Для углеродной лазерной плазмы результаты измерений дают $T_e \approx 8$ эB, что согласуется с результатом работы [10].

Электронная температура алюминиевой лазерной плазмы определялась из отношения интенсивностей линий Al^{3+} 76,77 нм и Al^{2+} 56 нм. Особенность спектра состоит в том, что в диапазоне длин волн 50-100 нм практически отсутствуют линии Al^{+} и Al^{2+} и большинство линий принадлежат иону Al^{3+} . Это доказывает изобилие ионов Al^{3+} в лазерной плазме. Так, соотношения плотностей частиц $Al_{-}Al^{+}$, Al^{2+} и Al^{3+} в зависимости от температуры, полученные из уравнения Саха, представлены на рис.1. Очевидно, что в области температур 10-15 эВ плотность ионов Al^{3+} резко увеличивается и $N_i^{3+}/N_i^{2+} \approx 10^4$, $N_i^{2+}/N_i^{1+} \approx 10^4$, где N_i^Z – плотность ионов с зарядом Z.





Для измерения плотности электронов в лазерной плазме исполь-

зован метод, основанный на сравнении измеренных и вычисленных ширин линий [11]. Наличие в горячей зоне лазерной плазмы заряженных частиц с большой плотностью приводит к штарковскому уширению и сдвигу центров большинства линий излучающих атомов и ионов. Причиной эффекта является сдвиг энергетических уровней излучающих атомов ионов при столкновении с электронами (ионами) [9,11,12].

Для измерения ширин выбраны сравнительно интенсивные линии, которые удалены от других линий (для предотвращения искажения контуров соседними линиями). Линии, у которых штарковские ширины значительно меньше, чем невозмущенные расстояния между взаимодействующими уровнями, считаются изолированными. Это условие было проверено для выбранных линий. Поскольку исследуемые линии лежат в областях спектра 160+200 нм и 220+270 нм, то для оценки уровня континуума (фонового излучения) использован диапазон спектра с центром на 210 нм и шириной ~10 нм, который практически лишен линейчатого спектра. Вычисление концентрации электронов производилось с помощью следующей формулы [11]:

$$\Delta\lambda = 2W \left(\frac{N_e}{10^{16}}\right) + 3.5 A \left(\frac{N_e}{10^{16}}\right)^{0.25} \left(1 - 1.2 N_D^{1/4}\right) W \left(\frac{N_e}{10^{16}}\right), \tag{5}$$

где $\Delta\lambda$ – полуширина линии, W – ударная электронная полуширина при $N_e = 10^{16}$ см⁻³, A – параметр ионного уширения, N_D – число частиц в дебаевской сфере. По отношению интенсивностей линий Al^{2+} и Al^{3+} найдена электронная температура, равная 10 эВ. Значения W и A, найденные с помощью аппроксимации для $T_e = 10$ эВ, используя табличные значения из [9], приведены ниже в таблице. Ионная часть уширения составляет малую долю (~ 0,01 нм) [13] в основном уширении и не учитывалась.

В настоящей работе измерены штарковские профили более десяти линий Al и Al⁺. Расчетные штарковские уширения линий Al⁺ 167.1 нм и 189.9 нм равны 10⁻³+10⁻² нм и 0.01+0.1 нм, соответственно, при шлотностях электронов 10¹⁷+10¹⁸ см⁻³, типичных для рассматриваемой лазерной плазмы. Для выяснения вклада доплеровского уширения в общую ширину линий предпочтительно измерять контуры по крайней мере двух линий с сильно различающейся чувствительностью к эффекту Штарка. Предполагая независимость штарковского и доплеровского уширений, можно рассматривать ширину наименее чувствительной линии в качестве верхнего предела для доплеровского уширения. Действительно, аппаратное уширение не позволило измерить ширины таких линий, тем самым подтверждая, что доплеровское уширение меньше 0,1 нм. То есть измеренные контуры линий представляют свертку штарковского профиля и аппаратной функции, которая аппроксимировалась лоренцевским контуром. Таким образом были найдены истинные значения ширин исследуемых линий. Значения длин волн и полуширин четырех линий, а также измеренных концентраций электронов приведены в таблице 1. Из таблицы следует, что среднее значение плотности электронов в алюминиевой лазерной плазме равно (5±2)-10¹⁷ CM⁻³.

Таблица 1.

λ, нм	W, 10 ⁻³ HM	Δλ, нм	$N_{\rm e}$, $10^{17} {\rm cm}^{-3}$
Al 237,34	13	0,34±0,03	1,3±0,5
Al ⁺ 247,53	3,9	0,55±0,05	7,0±2,8
Al 257,54	6,1	0,51±0,05	4,2±1,7
Al ⁺ 263,16	2	0,25±0,02	6,3±2,5

Теория штарковского уширения с большой точностью (~5%) описывает водородные и водородоподобные линии, однако для легких элементов эта теория допускает ошибки, достигающие 30% [13]. В описываемом эксперименте основным источником ошибок является неточность измерения ширины линий, которая равна ~10%. Не учтены также дополнительные механизмы уширения, обусловленные давлением нейтральных частип, так называемые резонансное (дипольное взаимодействие) и нерезонансное (силами Ван дер Ваальса) уширения. В нашем случае скорость расширения плазмы ~10⁶ см/с и, следовательно, доплеровское уширение ~ 0,01 нм, которое в 30+60 раз меньше штарковского уширения. Учитывая все возможные источники ошибок, можно заключить, что измерение концентрации электронов проведено с точностью ~ 40%.

Приведенные выше результаты касаются излучения, испускаемого всей лазерной плазмой. Применяя пространственную щель шириной 100 мкм, параллельную входной щели монохроматора, удалось изучить отдельные участки расширяющейся плазмы. Как отмечается в работе [12], вблизи поверхности мишени в спектре излучения преобладает континуум, следовательно, для увеличения отношения сигнал/шум целесообразно измерять штарковские профили линий на расстоянии > 0,5 мм от поверхности мишени. При повторном измерении полуширин с применением экранирующей щели, позволяющей регистрировать излучение с участка плазмы на расстоянии 1 мм от мишени, были получены те же результаты. Однако при удалении от мишени ширины линий постепенно уменышаются и уже на растояниях > 5 мм аппаратное уширение перекрывает истинные ширины линий. Таким образом, на расстояниях < 5 мм от поверхности мишени эффективная плотность электронов ≥ 10¹⁷ см⁻³. По мере удаления от поверхности мишени N. уменышается. Аналогичное поведение N. наблюдалось и в углеродной плазме.

Таким образом, в статье приведены результаты исследования спектров углеродной и алюминиевой лазерной плазмы. Доказано существование ЛТР для линий $C^{3+} 253$ нм и $C^{2+} 229,7$ нм, и с учетом трехчастичной рекомбинации найдена зависимость I'/I = f(T) при $N_e \ge 10^{17}$ см⁻³, позволяющая экспериментально определить T_e в лазерной плазме. Данный метод применен также для определения электронной температуры алюминиевой лазерной плазмы. Для измерения концентрации электронов было использовано штарковское уширение линий Al и Al⁺ в лазерной плазме. Удовлетворительное совпадение значений N_e , найденных с помощью семи линий, подтверждает адекватность теории уширения Грима (электронное ударное уширение) [13] и достоверность расчетных значений электронного уширения линий в лазерной плазме. С помощью экранирующей щели найден размер горячей области лазерной плазмы, где $N_e \ge 10^{17}$ см⁻³. Апробированные в данной работе методы диагностики лазерной плазмы в дальнейшем будут применены для мишеней, изготовленных из новых перспективных молекулярных соединений.

Работа выполнена благодаря финансовой поддержке программы CRDF Cooperative Grants Program, грант №АЕ2-372.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Г.Ц.Нерсисян, В.О.Папанян, М.В.Симонян. Оптика и спектроскопия, 80, №4, 627 (1996).
- M.Richardson, W.Silfast, H.A.Bender, A.Hanzo, V.P.Yanovsky, F.Jin, and J.Thorpe. Applied Optics, 32, №32, 6901 (1993).
- C.Wulker, W.Theobold, D.R.Gnass, F.P.Schafer, J.S.Bakos, R.Sauerbrey, S.P.Gordon, and R.W.Falcone. Appl. Phys. Lett., 68, 4, 1338 (1996).
- 4. T.Ditmire, J.W.G.Tisch, E.Springate, M.B.Mason, N.Hay, R.A.Smith. J.Maranges, and H.R.Hutchinson. Nature, 386, 6, 54 (1997).
- 5. C.Wulker, W.Theobold, D.Ouw, F.P.Schafer, B.N.Chichkov. Optics Comm., 112, 11, 21 (1994).
- A.McPherson, T.S.Luk, B.D.Thomson, K.Boyer, C.K.Rhodes. Appl. Phys. B, 57, №5, 337 (1993).
- 7. C.H.Nam, W.Tighe, E.Valeo, and S.Suchewer. Appl. Phys. B, 50, Ne4, 275 (1990).
- Г.Ц. Нерсисян, К.Р.Мирзоян, В.О.Папанян. Известия НАН Армении, Физика, 28, №4-6, 140 (1993).
- 9. Г.Грим. Спектроскопия плазмы. М., Атомиздат, 1969.
- 10. D.Colombat, G.F.Tonon. J. Appl. Phys., 44, Ne8, 3524 (1973).
- 11. J.T.Knudtson, W.B.Green, and D.G.Sutton. J. Appl. Phys., 6, №10, 4771 (1987).
- 12. E.Irons. J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., 6, No8, 1562 (1973).
- 13. Г.Грим. Уширение спектральных линий в плазме. М., Мир, 1978.

CARBON AND ALUMINIUM LASER PLASMAS DIAGNOSTICS IN THE VUV SPECTRAL RANGE

G. TS. NERSISYAN, V. O. PAPANYAN, K.M. POKHSRARYAN

The VUV radiation of the laser plasmas formed in the focus of a moderate power YAG:Nd laser on carbon and aluminium targets is studied. Diagnostics of the plasmas is possible due to experimentally shown existence of the local thermodynamic equilibrium. The electron temperature is obtained by measuring the intensity ratios of ionic lines. The electron concentration is measured utilizing the Stark broadening of aluminium lines. Mean electron density of more than 10¹⁷ cm⁻³ was measured in the hot plasmas region which elongates up to 5 mm distance from the target surface.