激光Al等离子体电荷态分布诊断研究

曹世权¹, 苏茂根^{1*}, 赵环昱², 张俊杰², 敏琦¹, 孙对兄¹, 何思奇¹, 赵红卫², 董晨钟^{1*}

1. 西北师范大学物理与电子工程学院, 甘肃省原子分子物理与功能材料重点实验室, 兰州 730070;

2. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000

*联系人, 苏茂根, E-mail: nwnu_sumg@163.com; 董晨钟, E-mail: dongcz@nwnu.edu.cn

收稿日期: 2019-12-31; 接受日期: 2020-03-20; 网络出版日期: 2020-04-23

国家重点研发计划(编号: 2017YFA0402300)和国家自然科学基金(编号: 11874051, 11904293, 61965015, 11564037)资助项目

摘要 本文分别利用光谱法和飞行时间法对真空环境中激光烧蚀产生的Al等离子体中离子的电荷态分布进行了诊断研究. 利用时空分辨的光谱测量装置测量了激光Al等离子体极紫外波段的辐射光谱, 通过光谱模拟诊断了等离子体中离子的电荷态分布, 并分析了其演化行为. 利用飞行时间装置测量获得了激光Al等离子体中离子的飞行时间谱, 进一步诊断了等离子体中离子整体的电荷态分布. 研究表明, 光谱法能够诊断激光等离子体中离子的局部和瞬态的电荷态分布, 飞行时间法能够诊断整体的电荷态分布, 两种诊断方法相互补充, 可以全面和准确地认识激光等离子体中离子的电荷态分布及其演化行为.

关键词 激光等离子体, 电荷态分布, 光谱法, 飞行时间法

PACS: 52.70.-m, 52.38.Mf, 52.70.Kz

1 引言

脉冲激光烧蚀产生的等离子体已广泛应用于极紫外(EUV)光刻、软X射线显微成像^[1,2]、重离子加速器^[3]、高电荷态离子光频标^[4,5]、脉冲激光沉积^[6]、天体等离子体以及受控核聚变等研究领域^[7,8]. 激光等离子体在这些领域的应用, 需要对其演化行为有清晰的认识. 激光等离子体的状态诊断研究是认识和理解激光等离子体演化特性的有效途径. 然而激光等离子体在膨胀过程中具有时间上快速演化和空间上不均匀性的本质特征, 涉及复杂的物理过程. 为了深入认识激光等离子体, 目前已发展了光谱法^[9]、快速成像法^[10]、

飞行时间法^[11]、激光干涉法^[12]以及汤姆逊散射法^[13]等多种诊断方法和技术, 实现了电子温度、电子密度、电荷态分布以及速度等状态参数的诊断研究.

在这些诊断方法中, 光谱法是广泛使用的一种诊断方法, 是基于等离子体辐射光与等离子体状态参数之间的关系而建立的, 主要有通过光谱模拟进行等离子体状态参数的诊断^[9,14]和基于线宽及线移的状态参数诊断^[15,16]. 利用光谱法可以获得等离子体的电子温度、电子密度以及电荷态分布等较多的状态信息^[14]. 由于辐射光谱中携带着丰富的等离子体微观原子过程信息, 因而光谱法是一种与等离子体微观演化过程相联系的诊断方法^[17]. 时空分辨光谱法诊断等离子体中

引用格式: 曹世权, 苏茂根, 赵环昱, 等. 激光Al等离子体电荷态分布诊断研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2020, 50: 065202

Cao S Q, Su M G, Zhao H Y, et al. Investigation on the charge-state distribution diagnosis of laser-produced Al plasmas (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2020, 50: 065202, doi: [10.1360/SSPMA-2019-0422](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2019-0422)

离子的电荷态分布时, 受光谱仪测量范围限制, 可以获得特定空间位置和延迟时间下的局部和瞬态诊断结果, 无法获知等离子体演化过程中离子整体的电荷态分布. 特别是真空环境中的激光等离子体呈现多种高电荷态离子共存的状态, 不同高电荷态离子的辐射覆盖了非常宽的波段, 从远红外到X射线区域, 目前的光谱仪器难以同时实现如此宽波段的光谱测量. 因此单一使用光谱法诊断等离子体中离子的电荷态分布, 获得的信息是不全面的. 为了更加全面和准确地认识激光等离子体在膨胀过程中的电荷态分布及其演化行为, 需要其他诊断方法补充. Woryna等人^[18]发展的飞行时间法能够诊断激光等离子体中离子的电荷态分布. 该方法采用两个偏转电极, 在电极上加高压后形成一个能量选择器, 只有满足特定能荷比的离子才可以通过电极板到达探测器, 实现不同电荷态离子的分离从而获得飞行时间谱. 进一步分析可获得等离子体中离子整体的电荷态分布信息. 该方法是诊断激光等离子体中高电荷态离子非常有效的方法, 能够给出直接的测量结果, 已被用于激光等离子体中离子的电荷态分布和能量分布的诊断研究^[11,19].

本文结合时空分辨光谱法和飞行时间法的测量优势, 分别对真空中激光Al等离子体在演化过程中离子的局部瞬态和整体的电荷态分布进行诊断研究, 旨在明确两种方法在电荷态分布诊断中的互补性, 为深入、准确认识激光等离子体膨胀过程中离子的电荷态分布及其演化行为提供方法支撑. 另外, 在构建激光等离子体辐射流体力学模型中, 利用光谱诊断结果进行模型的校准^[20]. 本文的工作可为辐射流体力学模型的进一步优化和修正提供参考.

2 实验装置

图1(a)和(b)分别为基于光谱法和飞行时间法的实验装置示意图, 实验装置的详细介绍分别见参考文献^[14,21]. 图1(a)中纳秒脉宽Nd:YAG激光器产生的1064 nm脉冲激光经透镜聚焦后与靶面成45°入射, 作用于放置在真空腔室中的样品靶表面产生等离子体. 等离子体的EUV辐射通过10 μm 的入射狭缝到达掠入射型EUV光谱仪的光栅上, 由MCP/CCD组成的多通道探测器进行光谱测量. 图1(b)中的纳秒激光等离子体在真空腔室中膨胀进入漂移管, 位于漂移管末端的由

图1 (网络版彩图)实验装置示意图. (a) 时空分辨光谱测量装置; (b) 飞行时间测量装置

Figure 1 (Color online) Schematic diagram of the experimental setup. (a) Spatio-temporally resolved spectral measurement device; (b) time-of-flight measurement device.

静电分析器(Electrostatic Ion Analyzer, EIA)和电子倍增管(Electron Multiply Tube, EMT)组成的离子探测器对等离子体中的高电荷态离子进行测量. 本文实验中使用的样品靶为高纯铝靶(纯度为99.999%), 腔室真空度约为 5×10^{-4} Pa.

3 结果与讨论

图2给出了基于时空分辨光谱测量装置测量的激光Al等离子体距靶面2.0 mm处的时间分辨光谱. 波长范围为8.5–13.5 nm, 激光功率密度为 8.2×10^{10} W/cm². 可以看出随着延迟时间的增加, 光谱整体呈先增强后减弱的演化趋势. 结合NIST数据库中的原子结构参数和Cowan原子结构计算的结果对实验测量光谱进行辨认分析, 确定出实验光谱主要来自Al³⁺–Al⁶⁺离子的2p–3s, 3d, 4s, 4d和5d的跃迁贡献^[17].

基于稳态的碰撞辐射(CR)模型对实验光谱进行模拟可以获得等离子体中离子的电荷态分布^[22]. 为了能够较为准确地描述激光等离子体中离子的电荷态分布, 在使用CR模型计算电荷态分布时, 假设激发态的能级布居满足归一化的Boltzmann分布. 图3(a)给出了

图 2 (网络版彩图)激光Al等离子体的时间分辨光谱(空间探测位置为距靶面2.0 mm处)

Figure 2 (Color online) Temporal-resolved emission spectra of laser-produced Al plasmas (spatial detection position is 2.0 mm from target surface).

图 3 实验测量光谱(a)和理论模拟光谱(b)比较

Figure 3 Comparisons between the measured (a) and simulated (b) spectrum.

空间探测位置为2.0 mm处, 延迟时间为45 ns时的实验测量光谱, 并给出了实验光谱中包含的 Al^{3+} – Al^{6+} 离子

不同跃迁的贡献. 图3(b)中给出了在电子温度为31 eV、电子密度为 $8.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 条件下的理论模型结果. 在理论模拟时, 谱线的半高全宽依据实验测量的结果设定为0.5 eV. 通过光谱模拟得到该测量条件下激光Al等离子体中 Al^{3+} – Al^{7+} 离子的丰度分别为1%, 12%, 43%, 38%和6%, 从而实现了激光等离子体中离子的电荷态分布诊断. 实验中光谱测量的误差约为15%, 光谱模拟的结果偏差约为5%^[14], 等离子体理论模型引入的误差约为20%^[23]. 因此光谱诊断结果总的不确定度约为40%.

为了进一步认识激光等离子体中离子整体的电荷态分布, 我们在相同激光功率密度下进行了飞行时间诊断测量. 图4给出了能荷比为392 eV的激光Al等离子体的飞行时间谱. 由于EMT探测器输出的结果是电子信号, 因而获得的飞行时间谱信号是负值, 负值越大表示离子束流越强. 通过分析飞行时间谱中不同电荷态峰值信号的时间关系可以识别出各谱峰所对应的电荷态. 在该实验条件下我们观测到了 Al^{2+} – Al^{8+} 的高电荷态离子, 且电荷态越高对应的飞行时间越短.

改变EIA上所加的电压, 提取不同能荷比下飞行时间谱中的信息就可以得到激光Al等离子体中不同电荷态离子的流强分布, 如图5所示. 它反映了等离子体中不同电荷态离子的电荷量分布. 可以发现激光Al等离子体中 Al^{5+} – Al^{8+} 离子的流强较强, 且峰值集中分布在19–24 μs 的时间范围内.

图 4 (网络版彩图)激光Al等离子体中离子的飞行时间谱

Figure 4 (Color online) Time-of-flight spectra of ions in laser-produced Al plasmas.

图 5 (网络版彩图)激光Al等离子体中不同电荷态离子的流强分布

Figure 5 (Color online) Current intensity distribution of different charge-state ions in laser-produced Al plasmas.

从飞行时间测量结果中进一步获得激光等离子体中离子的电荷态分布, 如图6中黑色方块所示. 为了比较分析, 同时给出了利用光谱法诊断得到的延迟时间分别为45和90 ns时激光Al等离子体中离子的电荷态分布(图6中蓝色三角形和圆圈). 其中延迟时间为90 ns的结果是在电子温度为24 eV、电子密度为 $2.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 条件下获得的. 从图中可以看出, 飞行时间诊断结果显示了Al¹⁺–Al⁹⁺的宽范围分布, 呈现的是等离子体中离子整体的电荷态分布. 其中Al⁵⁺的离子丰度最高约为25%, Al⁴⁺–Al⁷⁺离子占主导. 而光谱诊断结果中涉及电荷态较少且较为集中, 呈现的是局部和瞬态的结果. 在延迟时间为45 ns时, Al⁴⁺–Al⁶⁺离子占主导, Al⁶⁺离子丰度较高, Al⁴⁺离子丰度较低; 在延迟时间为90 ns时, Al⁴⁺–Al⁶⁺离子依然占主导, 但Al⁶⁺离子丰度降低, Al⁴⁺离子丰度增加, 表明激光等离子体在演化过程中离子的电荷态呈下降趋势. 由此可见光谱法诊断能够呈现出激光等离子体在膨胀过程中电荷态分布的演化过程.

上述研究表明, 利用光谱法获得的是激光等离子体中离子局部和瞬态的电荷态分布信息, 飞行时间法

图 6 (网络版彩图)激光Al等离子体中离子的电荷态分布

Figure 6 (Color online) Charge-state distribution of ions in laser-produced Al plasmas.

诊断得到的是激光等离子体中离子整体的电荷态分布. 这两种诊断方法相互补充, 结合它们可以全面和准确地认识激光等离子体在膨胀过程中离子的电荷态分布及其演化行为.

4 结论

本文分别利用光谱法和飞行时间法对真空环境中激光烧蚀产生的Al等离子体进行了诊断研究. 利用时空分辨的光谱测量装置测量了激光Al等离子体在8.5–13.5 nm波长范围内的辐射光谱, 辨认了谱线来源, 并基于稳态的CR模型通过光谱模拟诊断了激光等离子体中离子局部和瞬态的电荷态分布. 利用飞行时间法测量获得了激光Al等离子体中离子的飞行时间谱, 分析了不同电荷态离子的飞行时间特性, 并进一步诊断获得了激光等离子体中离子整体的电荷态分布. 通过本文的研究明确了两种方法在激光等离子体电荷态分布诊断中的互补性, 结合两者可以全面和准确地认识激光等离子体中离子的电荷态分布及其演化. 进一步为激光等离子体辐射流体力学模型的优化和修正提供参考.

参考文献

- 1 Su M G, Min Q, Cao S Q, et al. Detailed analysis of self-absorption profiles of highly-charged tin ions in the EUV region (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2017, 47: 123001 [苏茂根, 敏琦, 曹世权, 等. 高电荷态锡离子极真空紫外波段自吸收光谱轮廓的细致分析. 中国科学:

物理学 力学 天文学, 2017, 47: 123001]

- 2 Legall H, Blobel G, Stiel H, et al. Compact X-ray microscope for the water window based on a high brightness laser plasma source. *Opt Express*, 2012, 20: 18362–18369
- 3 Zhao H Y, Zhang J J, Jin Q Y, et al. New development of laser ion source for highly charged ion beam production at Institute of Modern Physics (invited). *Rev Sci Instrum*, 2016, 87: 02A917
- 4 Safronova M S, Dzuba V A, Flambaum V V, et al. Highly charged ions for atomic clocks, quantum information, and search for α variation. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 030801, arXiv: 1405.4271
- 5 Safronova M S, Dzuba V A, Flambaum V V, et al. Highly charged Ag-like and In-like ions for the development of atomic clocks and the search for α variation. *Phys Rev A*, 2014, 90: 042513, arXiv: 1407.8272
- 6 Diamant R, Jimenez E, Haro-Poniatowski E, et al. Plasma dynamics inferred from optical emission spectra, during diamond-like thin film pulsed laser deposition. *Diamond Related Mater*, 1999, 8: 1277–1284
- 7 Porquet D, Dubau J. X-ray photoionized plasma diagnostics with helium-like ions. Application to warm absorber-emitter in active galactic nuclei. *Astron Astrophys Suppl Ser*, 2000, 143: 495–514
- 8 Li C, Zhao D Y, Wu X W, et al. Spatial resolution measurements of C, Si and Mo using LIBS for diagnostics of plasma facing materials in a fusion device. *Plasma Sci Technol*, 2015, 17: 638–643
- 9 O’Sullivan G, Li B, D’Arcy R, et al. Spectroscopy of highly charged ions and its relevance to EUV and soft X-ray source development. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2015, 48: 144025
- 10 Harilal S S. Influence of spot size on propagation dynamics of laser-produced tin plasma. *J Appl Phys*, 2007, 102: 123306
- 11 Burdt R A, Tao Y, Tillack M S, et al. Laser wavelength effects on the charge state resolved ion energy distributions from laser-produced Sn plasma. *J Appl Phys*, 2010, 107: 043303
- 12 Liu K, Yi Y M, Li L B. Experimental investigation of delayed double pulse laser produced plasma in air (in Chinese). *Acta Phy Sin*, 2012, 61: 225205 [刘可, 易佑民, 李良波. 延迟双脉冲激光产生大气等离子体的实验研究. *物理学报*, 2012, 61: 225205]
- 13 Delserieys A, Khattak F Y, Lewis C L S, et al. Optical Thomson scatter from a laser-ablated magnesium plume. *J Appl Phys*, 2009, 106: 083304
- 14 Cao S Q, Su M G, Min Q, et al. Spatio-temporally resolved spectral measurements of laser-produced plasma and semiautomated spectral measurement-control and analysis software. *Phys Plasmas*, 2018, 25: 023304
- 15 Du C M, Zhang M X, Pang J Y. Spatial-resolved property of Stark broadening and electron density of emission spectra in laser-induced Ni plasmas (in Chinese). *Chin J Quantum Electron*, 2013, 30: 268–274 [杜传梅, 张明旭, 庞建勇. 激光诱导镍等离子体发射光谱展宽和电子密度的空间分辨特性. *量子电子学报*, 2013, 30: 268–274]
- 16 Konjević N. Plasma broadening and shifting of non-hydrogenic spectral lines: Present status and applications. *Phys Rep*, 1999, 316: 339–401
- 17 Su M G, Wang B, Min Q, et al. Time evolution analysis of dynamics processes in laser-produced Al plasmas based on a collisional radiative model. *Phys Plasmas*, 2017, 24: 013302
- 18 Woryna E, Parys P, Wołowski J, et al. Corpuscular diagnostics and processing methods applied in investigations of laser-produced plasma as a source of highly ionized ions. *Laser Part Beams*, 1996, 14: 293–321
- 19 Sha S, Jin Q Y, Li Z M, et al. Charge state distribution analysis of Al and Pb ions from the laser ion source at IMP. *Chin Phys C*, 2013, 37: 117006
- 20 Min Q, Su M G, Cao S Q, et al. Investigation of radiation dynamic properties in laser-produced silicon plasma (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2016, 46: 083011 [敏琦, 苏茂根, 曹世权, 等. 激光产生的硅等离子体辐射动力学特性研究. *中国科学: 物理学 力学 天文学*, 2016, 46: 083011]
- 21 Sha S. Study of High Charge States and Intensity Ion Beam on Laser Ion Source (in Chinese). Dissertation for Doctoral Degree. Lanzhou: Lanzhou University, 2013 [沙杉. 高电荷态强流激光离子源研究. 博士学位论文. 兰州: 兰州大学, 2013]
- 22 Colombant D, Tonon G F. X-ray emission in laser-produced plasmas. *J Appl Phys*, 1973, 44: 3524–3537
- 23 Zhang J Y, Yang J M, Zheng Z J, et al. Time-resolved diagnosis of the electron temperature of laser-produced aluminum plasma (in Chinese). *High Pow Las Part Beam*, 2004, 16: 1153–1156 [张继彦, 杨家敏, 郑志坚, 等. Al激光等离子体电子温度的时间分辨诊断. *强激光与离子束*, 2004, 16: 1153–1156]

Investigation on the charge-state distribution diagnosis of laser-produced Al plasmas

CAO ShiQuan¹, SU MaoGen^{1*}, ZHAO HuanYu², ZHANG JunJie², MIN Qi¹,
SUN DuiXiong¹, HE SiQi¹, ZHAO HongWei² & DONG ChenZhong^{1*}

¹ Key Laboratory of Atomic and Molecular Physics & Functional Material of Gansu Province, College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China;

² Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China

Laser-produced plasmas (LPP) have been known to possess great application potential under extreme ultraviolet (EUV) lithography, soft X-ray micrography, and heavy ion accelerator, highly charged ion optical frequency standards, pulsed laser deposition, astrophysics and nuclear fusion. The applications in these fields require a clearer understanding of the evolutionary behavior of the LPP. However, LPP is neither homogeneous nor static during their expanding and cooling process, which involves complex physical processes. For a deep understanding of the LPP, many diagnostic methods and techniques have been developed, such as spectroscopy, fast imaging, time-of-flight (TOF), laser interferometry and Thomson scattering. Among these methods, spectroscopy has been the most widely used diagnostic method, which can be used to obtain relatively more state information. However, the diagnosis results of charge-state distribution obtained by spatio-temporally resolved spectroscopy are local and transient, and cannot therefore obtain the overall distribution. In order to have a more comprehensive understanding of charge-state distribution and its evolutionary behavior of the LPP, other diagnostic methods are needed. The TOF method is used for the measurement of highly charged ions of the LPP, which can be used to obtain the overall charge-state distribution information. Therefore, in this work, spectrometry and TOF method were used for the diagnosis of charge-state distribution of the LPP in a vacuum. The EUV emission spectra of laser-produced Al plasmas were measured by using spatio-temporally resolved laser-produced plasmas spectroscopy technique. The charge-state distributions with different delay times at the distance of 2.0 mm from target surface were diagnosed by spectral simulation and their evolution behavior were also analyzed. The TOF spectra of laser-produced Al plasmas were measured by the TOF method, and the overall charge-state distribution of ions in laser-produced Al plasmas was obtained. The results revealed that spectroscopy can diagnose the local and transient charge-state distribution of ions in the laser-produced plasmas, and the TOF method can be used to diagnose its overall distribution, and the two diagnostic methods therefore complement each other. This work aims to clarify the complementarity of the two methods, and to provide a method support for the comprehensive and accurate understanding of the charge-state distribution and evolution evolutionary behavior during the expansion process of the LPP, and also provides a reference for further optimization and modification of the radiation hydrodynamics model of the LPP.

laser-produced plasmas, charge-state distribution, spectroscopy, time-of-flight method

PACS: 52.70.-m, 52.38.Mf, 52.70.Kz

doi: [10.1360/SSPMA-2019-0422](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2019-0422)