材料、结构及工艺

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2020.04.013

预电离效应对ArF准分子激光特性的影响分析

苏　丹[1,2,3]，赵江山[1,2,3]*，王　倩[1,2,3]

（1. 中国科学院微电子研究所，北京 100094；2. 北京市准分子激光工程技术研究中心，北京 100094；
3. 中国科学院大学，北京 100049）

摘　要： 利用流体模型对ArF准分子激光气体放电过程进行了数值模拟，通过对比不同初始预电离强度下的气体放电情况，分析了预电离效应对准分子激光系统放电特性的影响，并探究了不同气体参数下的预电离效果。结果表明，初始预电离强度对于极间击穿电压、ArF准分子的形成以及光输出特性均有显著影响。在保证均匀电场且有效放电的情况下，低的初始预电离强度难以“点燃”气体，但可以获得较高的激光输出能量，而提高初始预电离强度能有效降低击穿电压，却不利于气体对能量的吸收转化。此外，预电离效果受工作气压与F_2比例的影响，气压的升高或F_2浓度的增加，均会降低预电离的有效性。

关键词： 准分子激光；气体放电；流体模型；预电离；击穿电压

中图分类号： TN248.2　**文章编号：** 1001－5868(2020)04－0517－06

Effects of Pre-ionization on Properties of ArF Excimer Laser

SU Dan[1,2,3], ZHAO Jiangshan[1,2,3], WANG Qian[1,2,3]

(1. Institute of Microelectronics of The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100094, CHN;
2. Beijing Excimer Laser Technology and Engineering Center, Beijing 100094, CHN;
3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, CHN)

Abstract: A fluid model is used to investigate the discharge kinetics of ArF excimer laser. By comparing the gas discharge at different initial preionization intensities, the effects of preionization on discharge excited excimer laser system are analyzed. The preionization effect under different gas parameters is also discussed. The results show that the initial preionization intensity has significant effects on the breakdown voltage, the formation of ArF excimer, the optical quality and gain. Under the premise of uniform electric field and effective discharge, it is difficult to reach the gas breakdown threshold with low initial preionization intensity, but higher laser power can be obtained. Increasing the initial preionization intensity can effectively reduce the breakdown voltage, but it's not conducive to the absorption and conversion of energy. The preionization capability is affected by the gas pressure and fluorine ratio. The increasing of gas pressure or fluorine concentration can reduce the effectiveness of preionization.

Key words: excimer laser; gas discharge; fluid model; pre-ionization; breakdown voltage

0　引言

目前应用于光刻技术及工业加工的大能量准分子激光器多以放电泵浦激励方式为主，其核心运行物理机制是复杂的多组分气体高压(常为几十千伏)放电等离子体紫外激光辐射过程[1]。为了获得较高的激光能量输出，通常需要在高压气体工作介质(工作气体压强大于1.013×10^5 Pa)中获得大体积的均匀辉光放电。而在高气压、大放电间隙下，气体放电

收稿日期：2020－01－02.
基金项目：国家科技重大专项项目(2013ZX02202).
* 通信作者：赵江山　E-mail：zhaojiangshan@aoe.ac.cn

过程中极易出现不稳定的电弧，即由辉光放电过渡到弧光放电[2]，放电的不均匀性会影响激光脉冲的输出频率，对激光输出能量、光谱、光束质量以及气体和激光器的寿命均会产生不利的影响。为了解决这个问题，准分子激光器常采用预电离技术：在主电极放电之前使电极间气体具有一定的电离度，为主放电提供初期“种子电子”，引导其产生均匀的辉光放电，避免辉光-弧光转化[3]。

预电离技术对辉光放电的稳定性以及输出激光的性能指标有着重要影响，无疑是准分子激光器的关键技术之一[4]。Levatter 等[5]对预电离进行了理论研究，并提出初始电子密度的阈值[6]。Cernak 等[7]通过建立二维流体力学模型，给出了局部电子密度不均匀诱发流光而导致放电不稳定的详细演化过程。Xiong 等[8]采用二维模型研究了电晕预电离与二次电子激发对放电稳定性的影响。Mathew 等[9]利用 ICCD 相机对放电等离子体辉光进行拍照，直接观测到由预电离不足、化学动力学不稳定和电流密度过高引起的大体积辉光放电收缩、成丝、起弧等现象。

在预电离技术方面，国内外已有大量的研究成果，但这些研究成果仅提供理论参考和方法指导。对于不同的准分子激光系统和工作条件，放电所需的预电离效应是不一样的。本文运用一维流体模型来模拟 ArF 准分子激光动力学过程，研究预电离效应对准分子激光气体放电效果的影响，分析预电离因素对放电特性和激光输出脉冲特性的影响，以期为激光系统设计及结构优化提供指导思路和改进方向。

1 模型描述

气体放电过程是一个典型的非线性过程，其中发生着大量的电化学反应，包括气体原子或分子的激发与电离，粒子在气体中的漂移、扩散等运动过程，空间复合和附着等带电粒子的消失过程等，不同的非线性机制之间相互作用对于放电具有非常重要的影响[10]。本文模拟对象为 $Ar/F_2/He$ 混合气体，放电模型中所考虑的主要粒子反应见文献[11-12]。

为分析放电过程中十分复杂的电离气体，完整地表征其状态，要求理论模型及数值求解方案应满足具有足够高的计算精度、很好的收敛性和较高的计算效率等要求。本文建立流体模型，由气体放电的基本物理定律出发，用离散化物理变量来描述气体放电等离子体体系的状态，模拟准分子激光器气体放电过程的发展演变。在一维流体模型中，沿放电方向对等离子体进行数值模拟，且假设等离子体在垂直放电方向上是均匀分布的。

1.1 基本方程

流体模型将等离子体看作导电的连续介质进行研究，将粒子数密度和平均电子能量描述为时间和空间坐标的连续函数，通过联立连续性方程、电子能量方程和泊松方程来求解各个参量[13]。将计算得到的各个参量重新代入方程，迭代计算直至结果收敛，便可得到稳定的粒子密度、平均电子能量分布[14]。

粒子的运动可用连续性方程描述如下：

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = -\nabla \cdot \Gamma_i + S_i \tag{1}$$

式中，N_i 为粒子数密度，Γ_i 为粒子通量，S_i 为粒子的反应源项。

对于带电粒子，其通量由两部分组成，一部分是与带电粒子密度梯度相关的扩散，另一部分是在电场作用下的漂移：

$$\Gamma_i = -(\mu_i \cdot E)N_i - \nabla(D_i N_i) \tag{2}$$

而中性粒子，由于电晕放电的时间极短，其因温度或压力梯度产生的平流运动可忽略不计，故仅考虑输运过程中的扩散运动：

$$\Gamma_i = -D_i N_T \nabla\left(\frac{N_i}{N_T}\right) \tag{3}$$

式中，N_T 为总粒子数密度，D_i 为粒子扩散系数。

电子平均能量 ε 可由电子能量方程来描述：

$$\frac{\partial}{\partial t}(n_e\varepsilon) = q\Gamma_e \cdot E - n_e \sum_i N_i k_i \Delta\varepsilon_i - \nabla \cdot \left(\frac{5}{2}\varepsilon\Gamma_e - \lambda \nabla T_e\right) \tag{4}$$

式中，n_e 为电子密度，E 为电场强度，k_i 是碰撞速率系数，$\Delta\varepsilon_i$ 为能量损耗，λ 为电子热导率，Γ_e 为电子通量，$T_e = \frac{2}{3}\varepsilon$ 为电子温度。

空间电场强度 E 可由泊松方程计算得到：

$$E = -\nabla V \tag{5}$$

$$-\nabla \cdot (\varepsilon_0 \varepsilon_r \nabla V) = q \tag{6}$$

式中，V 为电势，ε_0 为真空介电常数，ε_r 为相对介电常数，q 为电荷数。

光子数密度 n_p 可描述为[12]

$$\frac{dn_p}{dt} = \frac{cn_p}{l_c}(g - \alpha - g_{th}) + K\frac{n_{ArF^*}}{\tau} \tag{7}$$

$$g = l_g \sigma_{st} n_{ArF^*} \tag{8}$$

$$\alpha = l_g \sum_i n_i \sigma_i \tag{9}$$

$$g_{th} = -\left[\frac{1}{2}\ln R + \ln(1-L)\right] \tag{10}$$

式中，c 为光速，l_c 为腔长，l_g 为增益长度，g 为光学增益，α 为吸收系数，g_{th} 为增益阈值，K 和 τ 分别为 ArF^* 的自发辐射比例系数和自发辐射寿命，n_{ArF^*} 和 σ_{st} 分别为 ArF^* 的数密度和受激辐射截面，n_i 和 σ_i 分别为吸收光子的粒子密度与其碰撞截面，R 为输出镜反射率，L 为光学单程损耗（不包含粒子吸收）。模拟中，取 $l_c = 105$ cm，$l_g = 90$ cm，$K = 1.8 \times 10^{-5}$，$R = 8\%$，$L = 8\%$。

1.2　放电电路

放电电路如图 1 所示，由电容 C_1 和 C_2、电感 L_1 和 L_2、电阻 R_1 以及开关 S_1 组成，R_D 表示放电等离子体的有效电阻。电容 C_1 为 10 nF，初始电压 U_{C0} 为 20 kV，C_2 为 1.5 nF，电感 L_1 为 600 nH，L_2 为 20 nH，电阻 R_1 为 1 Ω[11]。

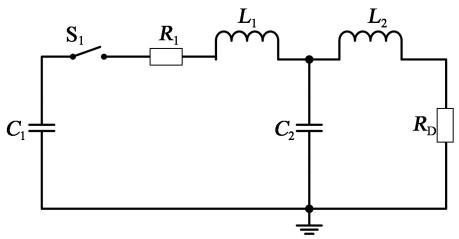


图 1　放电电路示意图

1.3　边界条件

对于阴极边界（$x = 0$），设定其电位为 0，由于放电时间极短（～100 ns），混合气体中 Ar 的浓度较小，故不考虑 Ar^+ 和 Ar_2^+ 碰撞阴极板发射二次电子的过程，即将 Ar^+ 和 Ar_2^+ 的二次电子发射系数设为 0，而将 He^+ 的二次电子发射系数设为 0.01；对于阳极边界（$x = 1$），其电位大小等于储能电容 C_1 的初始电压 U_{C0}，设定亚稳态粒子碰撞阳极后立即被表面吸附[15]。

1.4　模型参数

在对 ArF 准分子激光气体放电过程建立流体模型时，将电极间隙划分为 1 000 个单元数，瞬态求解过程中的时间步长为 1 ns，其他基本参量设定情况如表 1 所示。

表 1　模型参数

物理量	参数值
气压/$\times 10^5$ Pa	2.5×1.013
气体组分 $Ar/F_2/He$	0.078 9/0.002 4/0.918 7
气温/K	293.15
电极间距/cm	1
放电横截面积/cm^2	90
初始预电离强度/m^{-3}	1×10^{14}
初始平均电子能量/eV	1

2　结果与讨论

2.1　气体放电的演化过程

图 2 为极间电压 V、放电电流 I 与输出激光功率 P 的变化波形。极间电压从 0 时刻开始不断爬升，在 $t = 45$ ns 时达到最大值，约为 17 kV，随后气体发生了击穿，产生的电流脉冲迅速增长，使得外电路上限流电阻两端的电压增加，而极间电压开始下降。$t = 59$ ns 时，放电电流达到峰值约为 3.9 kA，同时，激光输出功率开始急剧上升，短短几纳秒内（$t = 66$ ns 时）便出现峰值且峰值约为 3.4 MW。

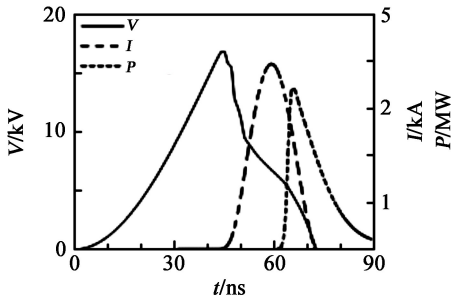


图 2　极间电压、放电电流与输出激光功率的变化波形

2.2　初始预电离强度对气体放电的影响

为探究初始预电离强度对 ArF 准分子激光气体放电的影响，在不改变模型其他工作参数的情况下，设置了不同的初始预电离强度 n_{e0}，即在初始电子密度为 $10^8 \sim 10^{18}$ m^{-3} 的范围内进行了数值模拟。

2.2.1　电学特性的变化情况

图 3 为极间电压在不同初始预电离强度下的变化情况。可以看到，电压上升初期，即使初始预电离强度不同，在不同初始预电离强度下的极间电压波形的增长曲线是完全重合的。但随着初始预电离强度增大，极间气体击穿所需的电压阈值减小，且在时间上有一定的提前，LC 电路的振荡现象也更为明显。这说明加大初始预电离强度使得气体被击穿之前，空间中形成足够浓度的电子分布所需时间更短，

主放电也更容易完成。而在放电过程中，电功率往往不能被气体完全吸收，当初始预电离强度过大时，LC 电路的振荡脉冲变大，即能量转化效率变低了。

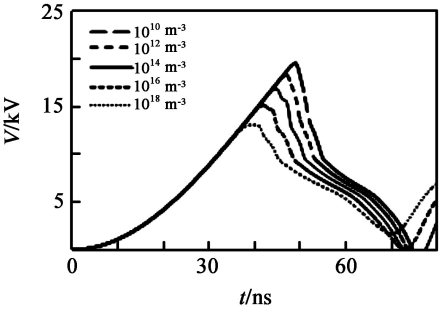
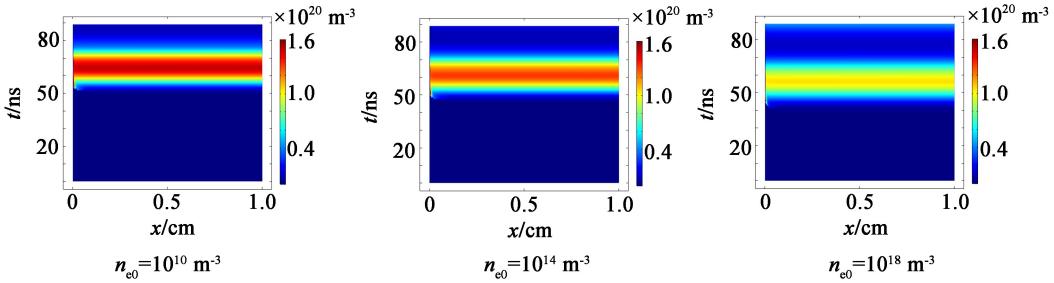
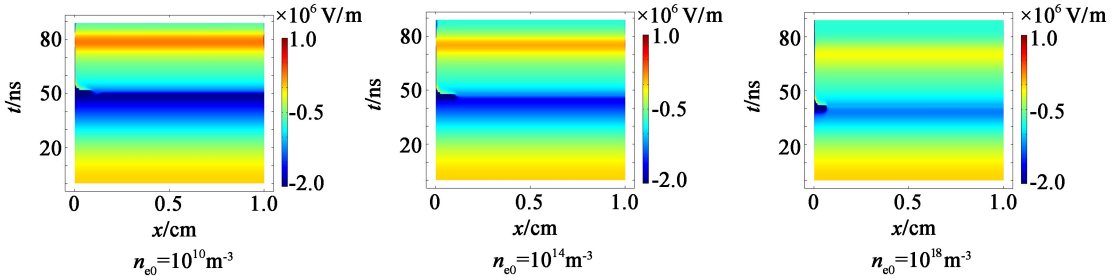


图 3 不同初始预电离强度下的极间电压变化波形

为对比预电离效果的均匀性，分别选取了初始预电离强度为 10^{10}，10^{14}，10^{18} m^{-3} 时的电子密度与空间电场的时空分布进行观察分析，如图 4 所示。可以看到，在放电产生前，极间电子密度分布基本均匀，放电开始后，近阴极区域（$x=0$ cm）由于剧烈的碰撞反应，产生了更多的电子数目，造成空间电荷场畸变。随着初始预电离强度增加，电子密度峰值减小，峰值出现时间逐渐前移，且近阴极区域的电子密度畸变范围也有所缩减。空间电场受空间电荷的变化所影响，初始预电离强度较小时，近阴极区域的电场畸变更为明显，初始预电离强度提高后，电场剧烈变化的范围缩小。这说明了初始预电离强度影响了电子密度的大小与分布情况，进而对空间电场的均匀性也产生了一定影响。



（a） 电子密度



（b） 电场强度

图 4 不同初始预电离强度下的电子密度与空间电场时空演变情况

2.2.2 粒子密度的变化情况

在 ArF 准分子激光气体放电过程中，ArF^* 作为光子的来源，其形成过程尤为重要。由图 5 中形成 ArF^* 的三个主要通道的反应速率随时间变化情况可知，在放电泵浦的 $Ar/F_2/He$ 混合气体中，ArF^* 主要是由 F_2 与处于原子激发态的 Ar^* 反应所生成的，Ar^+ 与 F^- 的离子复合反应是形成 ArF^* 的次要通道，而 Ar_2^+ 与 F^- 的复合对于 ArF^* 的形成贡献最小[16]。

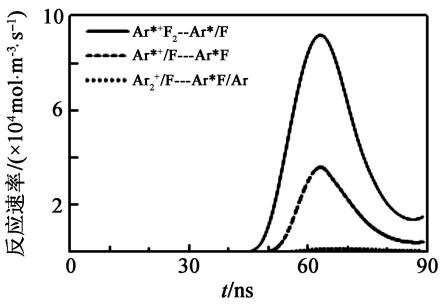


图 5 ArF^* 生成反应的速率变化曲线

为探究初始预电离强度对 ArF^* 形成的影响，对 ArF^* 生成反应中所涉及的主要粒子 $Ar^*/Ar^+/F^-/ArF^*$ 数密度的变化情况进行比较，如图 6 所示。可以看到，多种粒子的最大平均数密度 n 均随着初始预电离强度的增大而出现了不同程度的减少，整体上导致了 ArF^* 数目的减少。其中，Ar^* 的浓度变化呈现较大的下降趋势，而 Ar^+ 和 F^- 对初

始预电离强度的改变并不太敏感，这说明初始预电离强度的增大削弱了电子碰撞激发的能力，导致放电产生的激发态 Ar 原子数目减少，不利于准分子 ArF^* 的形成。

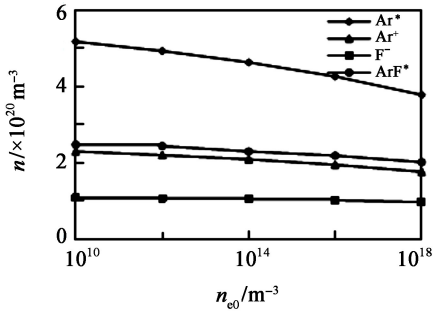


图 6　不同初始预电离强度下 Ar^*，Ar^+，F^-，ArF^* 的平均数密度最大值

2.2.3　激光输出的变化情况

光子的释放量直接受 ArF^* 的形成效率影响。图 7 显示了不同初始预电离强度下光子密度 n_p 随时间的变化情况，图 8 所示为不同初始预电离强度下的光脉冲能量 E 和光脉冲宽度 W（激光脉冲的半高宽度）。可以看到，随着初始预电离强度的提高，辐射的光子数目反而减少，出现峰值的位置向短时间方向移动，光脉冲能量呈下降的趋势，且光脉冲宽度也随初始预电离强度的改变而不同。由此可见，初始预电离强度对光输出有着显著影响，过大的初始预电离强度不利于激光增益的提高。

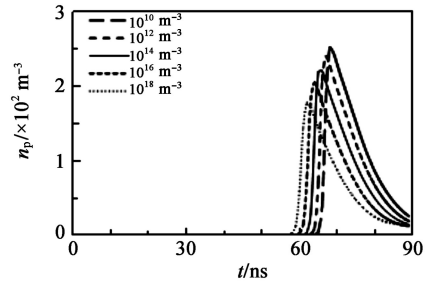


图 7　不同初始预电离强度下的光子密度变化情况

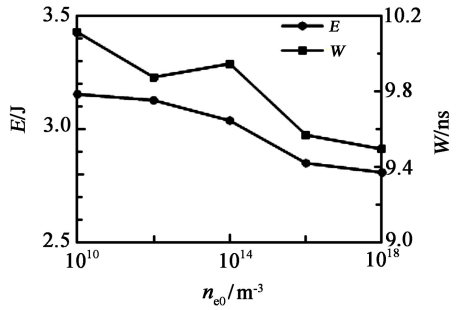


图 8　不同初始预电离强度下的光脉冲能量和光脉冲宽度变化情况

2.3　气体工作参数对预电离效果的影响

为探究气压和 F_2 浓度对预电离效应的影响，通过设定不同的工作参数，分别在低初始预电离强度（1×10^{10} m^{-3}）和高初始预电离强度（1×10^{14} m^{-3}）下对 ArF 准分子激光气体放电进行了数值模拟，计算得到多组气压和 F_2 离子浓度下的预电离效果，如表 2 所示。其中，击穿电压下降比 γ 的定义为在其他工作参数相同的情况下，高强度预电离下的击穿电压值 U_H 与较低强度预电离时击穿电压值 U_L 下降的比率，用公式可表述为

$$\gamma=\frac{U_L-U_H}{U_L}\times100\% \tag{11}$$

预电离效果的评估可以以击穿电压下降比的形式体现出来，比值越大预电离效果越佳，反之效果越差。根据表 2 的数据显示，在其他条件相同的情况下，击穿电压值与气压或 F_2 浓度的变化成正比，而击穿电压下降比与气压或 F_2 浓度的变化成反比，即增大气压或 F_2 浓度，预电离的效果有所下降。

表 2　多组气压、F_2 离子浓度下的预电离效果比较

气压/kPa	F_2 浓度/%	极间击穿电压/V		γ/%
		U_L	U_H	
253.312 5	0.24	19 566	16 790	14.19
	0.34	20 355	17 993	11.60
	0.44	21 245	19 110	10.05
303.975 0	0.24	24 065	21 450	10.87
	0.34	25 340	23 097	8.85
	0.44	26 313	24 399	7.27
354.637 5	0.24	28 186	25 863	8.24
	0.34	29 515	27 731	6.04
	0.44	30 470	29 371	3.61

一方面，由于气体压力与气体密度成正比，增大气压相当于提高了腔内的中性粒子密度，导致电子自由程缩短，不利于电子能量的累积，削弱了激发和电离能力，进而使得预电离效果下降，气体击穿需要更大的着火电压。另一方面，由于 F_2 具有很强的电负性，易于吸附电子形成负离子，F_2 浓度的增加使其与电子的附着反应得到加强，导致大量的电子被消耗，所形成的负离子易与空间中的正离子发生复合，使得气体中的带电质点减少，预电离效果下降，放电的形成和发展受到影响。

3　结论

本文建立了 ArF 准分子激光放电动力过程的流体模型，并针对预电离效应对放电特性的影响进

行了数值模拟分析，结果表明，在一定范围内提高初始预电离强度，能有效降低气体击穿的电压阈值，缩短放电所需时间，改善空间场分布的均匀性，有利于降低设备成本，提高输出频率，但同时影响了放电能量的高效转化，使得输出激光性能下降。此外，气体压力和 F_2 比例均会对预电离效果产生显著影响，气压或 F_2 浓度的增加将导致预电离效果被削弱。因此，要使 ArF 准分子激光系统能够进行有效的放电，需要合理地设置工作参数与预电离强度，根据需求适当调整预电离强度对于准分子激光系统的优化具有重大的实际意义。

参考文献：

[1] Dirk B, Pippert K D, Stamm U. History and future prospects of excimer lasers[C]// Proc. Second International Symposium on Laser Precision Microfabrication, 2002, 4426: 456812.

[2] 李雪辰，董丽芳. 大气压介质阻挡辉光放电研究综述[J]. 自然科学进展，2006，16(12)：1521-1529.
Li X C, Dong L F. Review of atmospheric dielectric barrier glow discharge[J]. Progress in Natural Science, 2006, 16(12): 1521-1529.

[3] 詹花茂，李 明，李成榕. 介质阻挡放电中的紫外线预电离[J]. 高电压技术，2005，31(2)：62-63.
Zhan H M, Li M, Li C R. Ultraviolet preionization in dielectric barrier discharge[J]. High Voltage Engineering, 2005, 31(2): 62-63.

[4] 余吟山，游利兵，梁 勖，等. 准分子激光技术发展[J]. 中国激光，2010，37(9)：2253.
Yu Y S, You L B, Liang X, et al. Progress of excimer lasers technology[J]. Chinese J. of Lasers, 2010, 37(9): 2253.

[5] Levatter J I, Lin S C. Necessary conditions for the homogeneous formation of pulsed avalanche discharges at high gas pressures[J]. J. of Appl. Phys., 1980, 51(1): 210-222.

[6] Bretagne J, Louvet Y. Theoretical analysis of the X-ray initiation of a high-pressure argon discharge for laser applications[J]. J. of Appl. Phys., 1987, 61(3): 827-832.

[7] Cerna K M, Bessieres D, Paillol J. Positive streamer formation in cathode region of pulsed high-pressure discharges for transversely excited atmosphere laser applications[J]. J. of Appl. Phys., 2011, 110(5): 053303.

[8] Xiong Z, Kushner M J. Photo-triggering and secondary electron produced ionization in electric discharge ArF^* excimer lasers[J]. J. of Appl. Phys., 2011, 110(8): 083304.

[9] Mathew D, Bastiaens H M J, Boller K J, et al. Effect of preionization, fluorine concentration and current density on the discharge uniformity in F_2 excimer laser gas mixtures[J]. J. of Appl. Phys., 2007, 102(3): 033305.

[10] 武占成，张希军，胡有志. 气体放电[M]. 北京：国防工业出版社，2012：11-33.
Wu Z C, Zhang X J, Hu Y Z. Gas Discharge[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2012: 11-33.

[11] Akashi H, Sakai Y, Tagashira T. Modelling of a self-sustained discharge-excited ArF excimer laser[J]. J. of Phys. D: Appl. Phys., 1994, 27(6): 1097-1106.

[12] Akashi H, Sakai Y, Tagashira I. Modelling of a self-sustained discharge-excited ArF excimer laser: the influence of photo-ionization and photodetachment by laser light on the discharge development[J]. J. of Phys. D: Appl. Phys., 1995, 28(3): 445-451.

[13] Xiong Zhongmin, Kushner M J. Surface corona-bar discharges for production of pre-ionizing UV light for pulsed high-pressure plasmas[J]. J. of Phys. D: Appl. Phys., 2010, 43(50): 505204-505213.

[14] 付强新. 低气压辉光放电等离子体模拟与特性研究[D]. 西安：西安电子科技大学，2013：37-41.
Fu Q X. Simulation and research on the characteristic of low-pressure glow discharge plasma[D]. Xi'an: Xidian University, 2013: 37-41.

[15] 付洋洋，罗海云，邹晓兵，等. 棒-板电极下缩比气隙辉光放电相似性的仿真研究[J]. 物理学报，2014，63(9)：095206.
Fu Y Y, Luo H Y, Zou X B, et al. Simulation on similarity law of glow discharge in scale-down gaps of rod-plane electrode configuration[J]. Chinese J. of Phys., 2014, 63(9): 095206.

[16] 雷 杰，王绍英，王 勇，等. 离子复合对准分子 ArF^*，Ar_2F^* 形成过程的影响[J]. 量子电子学，1987(4)：354-358.
Lei J, Wang S Y, Wang Y, et al. Influence of recombination in the formation processes of ArF^* and Ar_2F^* excimers[J]. Chinese J. of Quantum Electron., 1987(4): 354-358.

作者简介：

苏 丹(1994—)，女，广西南宁人，硕士生，研究方向为激光技术与应用；

赵江山(1974—)，男，河南人，博士，研究员，博士生导师，研究方向为激光技术。