

Röntgenemission aus laserinduzierten Plasmen:
Einfluss von Laserintensität und Pulsdauer bei verschiedenen
Targetsystemen

von
Dipl. Phys. Ulrich Vogt
aus Osnabrück

von der Fakultät II (Mathematik und Naturwissenschaften)
der Technischen Universität Berlin
zur Verleihung des akademischen Grades
D o k t o r d e r N a t u r w i s s e n s c h a f t e n
genehmigte Dissertation

Berlin 2002
D 83

Promotionsausschuss:

Vorsitzender:
Prof. Dr. Dähne

Berichter:
Prof. Dr. Sandner
Prof. Dr. von Oppen

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 09. Oktober 2002

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der spektralen Charakterisierung der Röntgenemission aus laserinduzierten Plasmen bei verschiedenen Targetmaterialien und Targetsystemen. Untersucht wird insbesondere der Einfluss der beiden Laserparameter Intensität und Pulsdauer auf die Emission. Diese wurden über einen weiten Bereich variiert. Motivation für die grundlegenden systematischen Messungen ist dabei die Anwendung eines Laserplasmas als Laborröntgenquelle für die Lithographie oder Spektroskopie. Die Messung der Spektren erfolgte mit teilweise absolut kalibrierten Spektrometern, die die Grundlage für das absolute Messen von Photonenzahlen darstellen und die die Bestimmung einer Konversionseffizienz von Laser- in Röntgenlicht ermöglicht.

Zwei Kapitel dieser Arbeit widmeten sich Untersuchung von Quellen für die EUV-Lithographie bei 13 nm Wellenlänge. Erste Messungen wurden an einem Wasserstrahl-Target durchgeführt. Die Emission im EUV-Bereich stammt dabei von Sauerstoffionen. Die Untersuchungen konzentrierten sich dabei auf eine Maximierung der Konversionseffizienz und die Frage, ob ein dünner Jet als Target für einen Laser hoher mittlerer Leistung geeignet ist. Mit dem MBI-burst-mode Laser als Modellsystem für einen solchen Laser konnte gezeigt werden, dass ein Flüssigkeitsstrahl die Anforderungen erfüllt. Durch eine Variation der Pulsdauer und der Energie des Lasers konnte ein Bereich von drei Größenordnungen in der Intensität überstrichen werden. Den höchsten Effizienzwert von 0,12% ($4\pi\text{sr}$) bei 13 nm Wellenlänge erhält man mit ns-Pulsen und einer Intensität von 10^{12} W/cm^2 , dabei ist der optimale Intensitätsbereich relativ eng definiert.

Als weiteres Targetmaterial wurden Xenon-Cluster untersucht. Anders als beim Wasserjet zeigte sich, dass das Target in einem relativ großen Intensitäts- und Pulsdauerfenster mit hohen Konversionseffizienzen betrieben werden kann. Sowohl mit einem 10 ns Laserpuls und 10^{14} W/cm^2 erreicht man eine Effizienz von ca. 0,3% ($2\pi\text{sr}$) als auch mit einem 2 ps und 50 fs Puls und $5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ bzw. $2 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$. Eine gemessene Konversionseffizienz bei 13,4 nm Wellenlänge von 0,8% ($2\pi\text{sr}$, 2,2% BW) wurde mit einem zirkular polarisierten 2 ps-Laserpuls erzielt.

In einem weiteren Kapitel ist die Charakterisierung eines Laserplasmas als Lichtquelle für ein Röntgenabsorptionsspektrometers beschrieben. Das Festkörper-Targetmaterial Kupfer stellte sich als geeignet heraus und es wurde eine optimale Lasereinstellung (Intensität $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, mittlere Leistung 1 W) für maximale Photonenzahlen gefunden. Weiterführende Messungen ermittelten die Größe und Ortsstabilität ($24 \pm 3 \mu\text{m}$ in vertikaler und $37 \pm 3 \mu\text{m}$ in horizontaler Richtung) der Kupfer-Plasmaquelle im Röntgenbereich und die Emissionsdauer ($44 \pm 7 \text{ ps}$). Aufgrund der Resultate erschien die Quelle für ein Absorptionsspektrometer geeignet, was in ersten Messungen dokumentiert werden konnte.

In Experimenten mit einem Gold- und Kupfertarget bzw. einem Gallium-Jet-Target, beschrieben im letzten experimentellen Kapitel dieser Arbeit, konnte gezeigt werden, dass kHz-fs-Laser für die Erzeugung harter Röntgenstrahlung (charakteristischer K-Strahlung und Bremsstrahlung) geeignet sind. Um eine möglichst hohe Photonenausbeute zu bekommen, muss wieder eine Optimierung der Laserintensität erfolgen. Diese Quellen sollen für die zeitaufgelöste Röntgendiffraktion eingesetzt werden.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen	3
2.1. Das stoßfreie Plasma	3
2.2. Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in einem Plasma	4
2.3. Absorption von Laserpulsen in einem Plasma	5
2.3.1. Multiphotonen- und Tunnelionisation	6
2.3.2. Stoßabsorption (Inverse Bremsstrahlung)	6
2.3.3. Resonanzabsorption	7
2.4. Plasmaexpansion	8
2.5. Strahlungsemission eines laserinduzierten Plasmas	8
2.5.1. Planck-Limit	9
2.5.2. Strahlungsmechanismen	10
2.5.3. Abschätzungen zur Konversionseffizienz eines laserinduzierten Plasmas	11
2.5.4. Wahl des Targetmaterials und Targetsystems	12
3. Aufbau der Diagnostik im weichen und harten Röntgenbereich	15
3.1. Spalt-Gitter-Spektrograph	15
3.2. Zonenplatten zur Quellgrößenmessung	19
3.3. Detektoren	20
3.3.1. Rückseitig belichtbare CCD-Kamera	20
3.3.2. Röntgendioden und Einzelphotonenzählung	21
3.3.3. Röntgen-Streak-Kamera	22
3.4. Kalibrierung des Spalt-Gitter-Spektrographen im EUV-Bereich	23
4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets	25
4.1. Hintergrund: EUV-Lithographie	25
4.2. Erzeugung von Flüssigkeitsstrahlen im Vakuum	27
4.3. Stabilitätsuntersuchungen bei hoher mittlerer Laserleistung	28
4.3.1. Nd:YLF burst-mode Laser	29
4.3.2. Versuchsaufbau und Durchführung	30
4.3.3. Ergebnisse und Diskussion	31
4.4. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer	35
4.4.1. Versuchsaufbau und Durchführung	36
4.4.2. Ergebnisse und Diskussion	36
4.4.3. Emission im Spektralbereich 1,5–2,5 nm	39
4.4.4. Ergebnisse und Diskussion	39

4.5. Abschließende Diskussion	41
5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets	45
5.1. Erzeugung und Eigenschaften von Clustern	45
5.1.1. Wechselwirkung von Clustern mit Laserstrahlung	48
5.2. Bestimmung der Clustergröße mittels Lichtstreuung	50
5.2.1. Versuchsaufbau und Durchführung	51
5.2.2. Ergebnisse	53
5.3. Einfluss der Repetitionsrate auf die Röntgenemission	54
5.3.1. Versuchsaufbau und Durchführung	54
5.3.2. Ergebnisse und Diskussion	56
5.4. Xenon-Spektren in Abhängigkeit vom Gasdruck	59
5.4.1. Absorption der EUV-Strahlung im Target	61
5.5. Messung der Quellgröße	62
5.6. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer	64
5.7. Experimente bei hohen Intensitäten und kurzen Pulsen	67
5.7.1. Versuchsaufbau	67
5.7.2. Absorption der Laser- und EUV-Strahlung	68
5.7.3. Xe-Spektren und Konversionseffizienzen	69
5.7.4. Einfluss der Laserpolarisation auf die EUV-Emission	71
5.8. Analyse der Xenonspektren	72
5.9. Abschließende Diskussion	74
6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster	79
6.1. Verwendetes Lasersystem	80
6.2. Messung der Photonenzahlen	80
6.2.1. Versuchsaufbau und Durchführung	81
6.2.2. Ergebnisse und Diskussion	82
6.3. Messung der Quellgröße	85
6.3.1. Versuchsdurchführung	85
6.3.2. Ergebnisse und Diskussion	85
6.4. Messung der Emissionsdauer	87
6.4.1. Versuchsaufbau und Durchführung	87
6.4.2. Ergebnisse und Diskussion	88
6.5. Beispiele für erste Messungen zur Röntgenabsorption	88
7. Untersuchung von Quellen für harte Röntgenstrahlung	93
7.1. Untersuchungen an Festkörpertargets	94
7.1.1. Versuchsaufbau und Durchführung	94
7.1.2. Ergebnisse	95
7.2. Untersuchungen an einem Gallium-Jet-Target	97
7.2.1. Versuchsaufbau und Durchführung	97
7.2.2. Ergebnisse	97
7.3. Diskussion	98

8. Zusammenfassung und Ausblick	101
8.1. EUV-Emission eines Wasserstrahl- und Xenon-Cluster-Targets	101
8.2. Laserplasmaquelle für ein Absorptionsspektrometer	102
8.3. Laserplasmen zur Erzeugung harter Röntgenstrahlung	103
A. Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit	105
B. Lebenslauf	107
C. Danksagung	109
Literaturverzeichnis	110

Abbildungsverzeichnis

2.1.	Eindimensionale Illustration der Stoßabsorption	7
2.2.	Theoretisches Emissionsspektrum eines Stickstoffplasmas bei $T_e = 200$ eV. Zum Vergleich ist das Spektrum eines Planck-Strahlers gleicher Temperatur gezeigt. Nach [Leb]	9
3.1.	Schematische Darstellung des Spalt-Gitter-Spektrographen. Links groß ge- zeigt ist eine elektronenmikroskopische Aufnahme eines Gitters. Nach [Ham97]	16
3.2.	Beispiel eines Spektrum eines Ethanoljettargets im Wellenlängenbereich 1– 4 nm. Deutlich zu sehen sind die höheren Beugungsordnungen des Stützste- gegitters. Zur Auswertung benutzt man die 0. Stützstegeordnung. [Vog99] . .	17
3.3.	Transmission von 200 nm dicken Filtern aus Zirkonium (gestrichelte Linie) und Aluminium (durchgezogene Linie) im Wellenlängenbereich von 0,5– 20 nm [Gulb]	18
3.4.	Hochauflösende Abbildung mit einer Zonenplatte	19
3.5.	Funktionsweise eines normalen a) und rückseitig gedünnten b) CCD-Chips. Nach [Wil94]	21
3.6.	Röntgenspektrum von ^{241}Am für die Energiekalibrierung der AMPTEK-Diode	22
3.7.	Funktionsweise einer Streak-Kamera	23
3.8.	Ergebnis der Kalibrierung des Spalt-Gitter-Spektrographen im Wellenlängen- bereich 9,5–15,5 nm	24
4.1.	Prinzip eines EUV-Wafersteppers mit Laserplasmaquelle, daneben dargestellt ist die Reflektivität eines Mo/Si-Multilayer Spiegels. Nach [Att00]	26
4.2.	Prinzip eines Flüssigkeitsstrahl-Targets für ein Laserplasma	28
4.3.	Layout des Nd:YLF burst-mode Lasers [Wil]	29
4.4.	Schematischer Versuchsaufbau für die in diesem Kapitel beschriebenen Ex- perimente	31
4.5.	Typische Spektren für 3 ns (blau), 300 ps (rot) und 30 ps (schwarz) Pulsdauer und einer mittleren Laserleistung von 0,6 kW im Burst	32
4.6.	Mit Photodioden gemessene Puls-zu-Puls Stabilität des Lasers (oben) und des EUV-Signals bei 0,6 kW (links) bzw. 5 kW (rechts) Leistung im Burst (Laserpulsdauer 30 ps). Gezeigt sind die Signale für 250 kHz (Mitte) und 500 kHz (unten) Repetitionsrate.	33
4.7.	Konversionseffizienzen (13 nm Wellenlänge) bei 0,6 kW (links) und 5 kW (rechts) Leistung im Burst in Abhängigkeit der Repetitionsrate für drei Puls- dauern	34

Abbildungsverzeichnis

4.8.	Größe der Lücke, die im Jet nach dem Laserbeschuss entsteht, zu verschiedenen Zeiten. Ein linearer Fit an die Messwerte für Zeiten $> 1 \mu\text{s}$ ergibt eine Wachstumsgeschwindigkeit der Lücke von 6,4 m/s. Grafik von A. Thoß [Tho02]	35
4.9.	Konversionseffizienz bei 13 nm Wellenlänge als Funktion der Laserintensität bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate)	36
4.10.	Stationäre Ionenpopulationsverteilung von Sauerstoff im LTG bei einer Atomdichte von $4,4 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$. Numerik zur Berechnung von Dr. J. Ehlert, MBI	38
4.11.	Konversionseffizienz in der 12,99 nm Linie in Abhängigkeit von der Laserintensität bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate). Die eingezeichnete Kurve ist der Verlauf der Anzahldichte der O-VI Ionen, berechnet mit dem im Text beschriebenen Modell.	39
4.12.	Spektren im Bereich 1,5–2,5 nm für drei Pulsdauern bei einer Leistung von 5 kW im Burst (blau: 3 ns, rot: 300 ps, schwarz: 30 ps Pulsdauer)	40
4.13.	Normierte Effizienz für die O-VII Linie bei 2,16 nm Wellenlänge in Abhängigkeit der Laserintensität (Quadrate: 3 ns, Kreise: 300 ps, Dreiecke: 30 ps Pulsdauer). Die eingezeichnete Kurve ist der Verlauf der berechneten Anzahldichte der O-VII Ionen.	41
4.14.	Vergleich der in der Literatur veröffentlichten Konversionseffizienzen von Wasser-/Ethanoltargets für 13 nm Wellenlänge	43
5.1.	Verschiedene Düsenformen, die zur Erzeugung von Clustern verwendet werden können: a) Schall-Düse, b) Laval-Düse, c) Überschall-Düse	46
5.2.	Schematische Darstellung eines Cluster-Targets	47
5.3.	Schematische Darstellung des Aufbaus für Lichtstreuungsexperimente	52
5.4.	Abhängigkeit des Streusignals vom Xenon-Düsendruck. Die Linie ist eine Anpassung an die Messwerte.	53
5.5.	Gemessenes Streusignal unter verschiedenen Beobachtungswinkeln	53
5.6.	Experimenteller Aufbau des Xenon-Cluster-Targets zur Messung der Röntgenspektren	55
5.7.	Abhängigkeit der Konversionseffizienz bei 13,4 nm von der Repetitionsrate (Laserintensität $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$)	57
5.8.	Abhängigkeit der Transmission (Quadrate) und des Röntgensignals (Kreise) von der Repetitionsrate	57
5.9.	Ausschnitte aus einem Laserburst und dem EUV-Signal, gewonnen aus den Messungen mit Diode 2 bzw. 1. Oben: 125 kHz (100 Pulse/Burst), Unten: 500 kHz (400 Pulse/Burst)	58
5.10.	EUV-Signal, ermittelt aus der Messung mit Diode 1, bei 125 kHz (100 Pulse/Burst)	58
5.11.	Xenon-Spektren (30 bar Xe-Druck) bei einer Energie von 2,4 J/Burst und für die Pulsdauern 30 ps (schwarz), 300 ps (rot) und 3 ns (blau)	59
5.12.	Abhängigkeit der Konversionseffizienz vom Gasdruck bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate) Laserpulsdauer	60

5.13. Abhängigkeit der Transmission der Laserstrahlung und des Röntgensignals vom Gasdruck bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate) Laserpulsdauer und einer Laserenergie von 2,4 J/Burst	60
5.14. Modell der Targetgeometrie	61
5.15. Xenonspektren, aufgenommen mit Tgs2 bei 15 bar Gasdruck und 2,4J Energie/Burst. Gezeigt sind die Ergebnisse für die drei Pulsdauern 30 ps (schwarz), 300 ps (rot) und 3 ns (blau).	62
5.16. Röntgensignal bei 7 nm (offene Symbole) und 13,4 nm (geschlossene Symbole) in Abhängigkeit vom Gasdruck für die drei Pulsdauern 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate).	62
5.17. Transmission von Röntgenstrahlung durch 1 bar Xenon auf 1 mm Länge bei einer Temperatur von 293 K [Gula]. Man beachte die logarithmische Skala.	63
5.18. Mit dem Tgs2 gemessene Quellgröße für 30 ps (schwarz), 300 ps (rot) und 3 ns (blau) Laserpulsdauer in Richtung der Laserstrahlachse	63
5.19. Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Intensität und Pulsdauer bei 13,4 nm Wellenlänge in einer relativen Bandbreite von 2,2% (Dreiecke: 30 ps, 30 bar Xe-Druck; Kreise: 300 ps, 40 bar; Quadrate: 3 ns, 40 bar; Rauten: 10 ns, 12,5 bar)	64
5.20. EUV-Spektren, aufgenommen mit einem 10 ns-Laser und Einzelpulsenergien von 0,975 J (Intensität 10^{14} W/cm ² , schwarz), 0,8 J ($8 \cdot 10^{13}$ W/cm ² , rot) und 0,75 J ($7,6 \cdot 10^{13}$ W/cm ² , blau)	65
5.21. Schematische Darstellung der unterschiedlichen Düsengeometrien. Links: Düse, die für die Experimente in Abschnitt 5.7 verwendet wurde. Rechts: Düse, die für die Experimente in den Abschnitten 5.3–5.6 verwendet wurde.	68
5.22. Transmission der Laserstrahlung in Abhängigkeit vom Gasdruck bei 50 fs (Quadrate) und 2 ps (Kreise) Pulsdauer	69
5.23. Spektren, aufgenommen mit Tgs2 und 50 fs-Puls, bei verschiedenen Gasdrücken: 3 bar (rot), 7,5 bar (blau), 17,5 bar (grün), 35 bar (schwarz)	69
5.24. Xenon-Spektren, aufgenommen mit Tgs1 bei 50 fs Pulsdauer und 15 bar Xe-Druck (schwarz) und 2 ps Pulsdauer und 20 bar Xe-Druck (rot)	70
5.25. Konversionseffizienzen bei 13,4 nm Wellenlänge in Abhängigkeit vom Xe-Gasdruck und 50 fs (Quadrate) und 2 ps (Kreise) Pulsdauer	70
5.26. Konversionseffizienz bei 13,4 nm in Abhängigkeit der Laserpolarisation (Pulsdauer 2 ps): Lineare Polarisation: Kreise, Zirkularpolarisation: Quadrate	72
5.27. Vergleich der in der Literatur veröffentlichten Konversionseffizienzen von Xe-Gaspuls/Clustertargets für 13,4 nm Wellenlänge	76
6.1. Röntgenemission (oben) des Plasmas bei einem Festkörpertarget, aufgenommen mit einer Photodiode im Vergleich zum Lasersignal (unten)	81
6.2. Versuchsaufbau zur Messung absoluter Photonenzahlen	82
6.3. Normierte Emissionsspektren der untersuchten Targetmaterialien	83
6.4. Abhängigkeit der Konversionseffizienz a) und der Röntgenleistung b) von der Laserintensität für PET (links, offenes Symbol C-VI- α , geschlossenes C-V- α) und Kupfer (rechts). Die mittlere Laserleistung zu den Punkten in b) ist in c) dargestellt.	84

Abbildungsverzeichnis

6.5.	Versuchsaufbau zur Vermessung der Quellgröße mit einer Zonenplatte	86
6.6.	Mit der Zonenplatte gemessene Bilder der Quelle (Laserintensität $5 \cdot 10^{14}$ W/cm ²) für ein Kupfer- (links) und PET-Target (rechts) bei zwei unterschiedlichen Wellenlängen 4,0 nm (oben) und 3,37 nm (unten)	86
6.7.	Versuchsaufbau zur Messung der Emissionsdauer	87
6.8.	Emissiondauer eines PET-Targets (gestrichelt) und eines Kupfertargets (durchgezogen)	88
6.9.	Oben: Zwei Spektren, aufgenommen einmal mit Probe (rot) und einmal ohne Probe (schwarz). Unten: Aus den Spektren ermitteltes Absorptionsspektrum von PET (Probe: 900 nm freitragende Folie)	89
6.10.	Absorptionsspektrum von TAPH ₂ (Tetra(<i>tert</i> -butyl)tetraazaporphyrin) (vgl. [Bec02])	90
6.11.	Absorptionsspektrum von β -Carotin	91
6.12.	Strukturformeln der untersuchten Substanzen: a) PET, b) TAPH ₂ , c) β -Carotin	92
7.1.	Versuchsaufbau zur Messung harter Röntgenstrahlung	94
7.2.	Spektrum eines Kupfertargets im Bereich 1-10 keV (Laserintensität $2,5 \cdot 10^{16}$ W/cm ² , Pulsdauer 25 fs)	95
7.3.	Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Intensität beim Kupfertarget (Laserpulsdauer 25 fs)	95
7.4.	Goldspektrum bei 350 μ J (schwarz) und 500 μ J (rot) Laserenergie (Laserpulsdauer 25 fs)	96
7.5.	Erstes Röntgenspektrum aufgenommen mit einem Gallium-Jet-Target (Laserintensität $3 \cdot 10^{16}$ W/cm ² , Pulsdauer 50 fs)	98
7.6.	Vergleich der in der Literatur beschriebenen Konversionseffizienzen bei einem Kupfertarget in Abhängigkeit der Laserintensität. Zusätzlich eingezeichnet ist der Wert für das Gallium Jet-Target.	99

1. Einleitung

Zu den bedeutendsten experimentellen Entdeckungen in der Physik gehört die Entdeckung der Röntgenstrahlung durch Wilhelm Conrad Röntgen im Jahr 1895 [Rön96]¹. Selten wurde eine Entdeckung so schnell weltweit einer breiten Öffentlichkeit bekannt und so rasch von anderen Wissenschaftlern für eine Vielzahl von Anwendungen aufgegriffen, lag doch der Nutzen für die medizinische Diagnostik auf der Hand. Doch obwohl Röntgen in seinen sorgfältigen Untersuchungen bereits die meisten Eigenschaften dieser „neuen Art von Strahlen“ erforscht hatte, herrschte lange Zeit Unklarheit über ihre eigentliche Natur. Erst durch die Beugung von Röntgenstrahlen an den Gitterebenen eines Kristalls konnte 1912 nachgewiesen werden [FKL12], dass es sich bei der Röntgenstrahlung um elektromagnetische Strahlung handelt, deren Wellenlänge allerdings wesentlich kleiner ist als die Wellenlänge der Strahlung im sichtbaren Spektralbereich. Gleichzeitig markiert dieses Experiment den Beginn der modernen Festkörperphysik, da durch die Röntgenbeugung nachgewiesen wurde, dass Kristalle aus periodisch angeordneten Atomen bestehen.

Mit dem Begriff Röntgenstrahlung bezeichnet man heutzutage einen Spektralbereich, der von ungefähr 10 nm ($h\nu = 124$ eV) bis 0,01 nm ($h\nu = 124$ keV) Wellenlänge reicht. Am langwelligen Ende dieses Bereichs spricht man auch von Extrem Ultravioletter Strahlung (EUV, $\lambda = 40\text{--}5$ nm, entsprechend $h\nu = 30\text{--}250$ eV), daran schließt sich der Bereich der weichen Röntgenstrahlung an ($\lambda = 5\text{--}0,1$ nm, $h\nu = 250$ eV–12,4 keV). Beide Bereiche zusammen werden auch als Vakuum Ultraviolet (VUV) bezeichnet, da die Absorption der Strahlung in Luft sehr groß ist und sie deshalb im Vakuum geführt werden muss. Den Bereich unterhalb von 0,1 nm charakterisiert man mit dem Begriff harter Röntgenstrahlung. Röntgen arbeitete dabei am energetisch gesehen oberen Ende dieses Spektralbereichs, zur Erzeugung der Strahlen dienten Kathodenstrahlröhren [Rön96]. Diese Quellen werden heute mit dem Begriff klassische Röntgenröhren bezeichnet. Der Wirkungsgrad dieser Röhren für die Erzeugung niederenergetischer Strahlung ist allerdings sehr gering. So stehen erst seit der Entdeckung der Synchrotronstrahlung im Jahre 1947 brillante Lichtquellen für EUV- und weiche Röntgenstrahlung zur Verfügung [WD80]. Seit dieser Zeit sind auch eine Vielzahl von Anwendungen in diesem Bereich entwickelt worden wie z.B. die Röntgenabsorptionsspektroskopie [Stö96], die Photoelektronen-Spektroskopie [Hüf96], die Röntgenlithographie [Dob01] oder die Röntgenmikroskopie [TSRU98].

Da der Betrieb eines Elektronenspeicherrings sehr kostenintensiv und die Zahl der Strahlrohre begrenzt ist, wird seit langem an alternativen Konzepten für Laborröntgenquellen gearbeitet. Die erste Realisierung eines Lasers im Jahre 1960 [Mai60] und die sich anschließende rasante Entwicklung der Lasertechnik ebnete dabei den Weg zu laserbasierten Laborquellen. Zwar ist der Bau von Röntgenlasern selbst schwierig, da die nötigen Pumpleistungen sehr groß sind [NSK⁺97, Roc99]. Daher sind für den Betrieb eines Röntgenlasers Pumplaser mit mehreren Joule Pulsenergie bei einer Pulsdauer im ps-Bereich notwendig und es existieren

¹1. Nobelpreis für Physik 1901

1. Einleitung

nur wenige Labore, in denen an Röntgenlasern gearbeitet wird. Fokussiert man aber einen gepulsten Laserstrahl, der innerhalb des Pulses eine Leistung von einigen Megawatt oder mehr besitzt, was mit einer Vielzahl von kommerziell erhältlichen Lasern zu erreichen ist, auf ein Material (Target), entsteht ein heißes laserinduziertes Plasma (LPP). Dieses Plasma emittiert neben sichtbarer Strahlung auch Röntgenstrahlung, es kann also als Röntgenquelle benutzt werden. Ein solches lasergetriebenes System ist äußerst kompakt im Vergleich zu einem Speicherring, man spricht auch von *table-top* Systemen. Eine weitere Möglichkeit zur Erzeugung von EUV- oder weicher Röntgenstrahlung mit Hilfe von Lasern sind sogenannte Hohe Harmonische in Gasen [LB93, MKG93]. Es handelt sich dabei um einen extrem nichtlinearen Effekt, bei dem Photonen mit einer Energie entstehen, die einem Vielfachen der Energie eines Laserphotons entsprechen. Auf diese Weise konnte schon Strahlung bis in den Bereich einiger Nanometer Wellenlänge erzeugt werden, die gegenüber der Strahlung aus Plasmen den Vorteil hat, dass sie in einen Kegel geringer Divergenz emittiert wird und innerhalb des Kegels räumlich kohärent ist. Jedoch ist die Effizienz der Umwandlung von Laserenergie in Röntgenenergie bei Hohen Harmonischen um Größenordnungen geringer als bei einem Laserplasma [SCH⁺00b].

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Röntgenemission aus laserinduzierten Plasmen im Bereich von EUV- bis hin zu harter Strahlung von einigen keV. Die Charakteristik eines Röntgenspektrums wird dabei im wesentlichen durch das verwendete Targetmaterial bestimmt, die Stärke der Emission in einer gewissen Bandbreite durch die beiden Laserparameter Pulsdauer und Intensität. Der Einfluss dieser zwei Parameter auf die Plasmaerzeugung wurde im Rahmen dieser Arbeit an verschiedenen Targetmaterialien und Targetsystemen genauer untersucht. Obwohl die prinzipiellen Vorgänge in einem Plasma bei niedrigen bis mittleren Laserintensitäten ($\leq 10^{17}$ W/cm²) im wesentlichen verstanden sind, gibt es bis jetzt keine allgemeine Theorie, mit der man für beliebige Laser- und Targetparameter das zu erwartende Röntgenspektrum berechnen kann. Notwendig sind vielmehr systematische Untersuchungen zur Abhängigkeit der Emission von den verschiedenen Parametern. Die Ergebnisse können dann als Basispunkte für die Entwicklung geeigneter Verfahren zur Berechnung der Röntgenemission dienen. Hierzu möchte die vorliegende Arbeit einen Beitrag leisten. Motivation für die Versuche sind spezielle Anwendungsmöglichkeiten von Laserplasmen als Laborröntgenquelle, deren Eigenschaften für die jeweiligen Zwecke optimiert werden sollen. Es handelt sich dabei zum einen um die Verwendung eines laserinduzierten Plasmas als Lichtquelle für die EUV-Lithographie, hierzu wurden zwei verschiedenen Targets untersucht, ein Wasserstrahltarget und ein Xenon-Cluster-Target. Zum anderen wurde ein Plasma als Quelle für ein Röntgenabsorptionsspektrometer verwendet, hier kamen Festkörpertargets aus Kupfer zum Einsatz. Abschließend wird eine Plasmaquelle für die Röntgendiffraktion vorgestellt.

Von besonderer Wichtigkeit bei der Untersuchung der spektralen Eigenschaften von Plasmen ist das Messen von absoluten Werten wie z.B. den Photonenzahlen. Nur auf diese Weise ist es möglich, die eigenen Resultate mit den Messungen anderer Gruppen zu vergleichen. Allerdings sind Absolutmessungen im Röntgenbereich besonders schwierig, da man dazu kalibrierte Optiken und Detektoren benötigt, als Eichnormal aber derzeit nur Speicherringe zur Verfügung stehen. Deshalb wurden ausschließlich kalibrierte Messwerkzeuge verwendet, deren Eichung zum Teil in speziellen Experimenten durchgeführt wurde.

2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen

In diesem Kapitel wird zunächst eine kurze Einführung in die Physik von Plasmen gegeben. Dazu wird ein grundlegendes Modell zur Beschreibung von Vorgängen in einem Plasma dargestellt. Anschließend wird genauer auf die Erzeugung von Plasmen mittels gepulster Laser eingegangen.

2.1. Das stoßfreie Plasma

Der Begriff Plasma bezeichnet in der Physik ein nach außen elektrisch neutrales makroskopisches Vielteilchensystem. Dieses enthält aber so viele freie Ladungsträger (Elektronen und Ionen), dass die Systemeigenschaften im wesentlichen durch die elektromagnetischen Wechselwirkungen der Teilchen untereinander oder mit äußeren elektromagnetischen Feldern bestimmt werden [SW92].

Historisch gesehen wurde der Begriff Plasma von Langmuir 1928 bei der Untersuchung von Gasentladungen eingeführt. Er definierte ein Plasma als ein System, dessen Debyelänge λ_d wesentlich kleiner ist als seine makroskopische Ausdehnung [Hor91]:

$$\lambda_d = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T}{e^2 n_e}} \quad (2.1)$$

Es sind ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante, k_B die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur¹, e die Elementarladung und n_e die Elektronendichte. Die Debyelänge legt dabei den Bereich in einem Plasma fest, in dem Ladungstrennung lokal vorhanden ist. Auf Größenskalen kleiner als λ_d sind also die Anwesenheit einzelner Teilchen und deren Wechselwirkung untereinander wichtig, während auf größeren Längen ein Plasma durch kollektive Phänomene beschrieben werden kann.

Startpunkt für eine einfache kollektive Beschreibung eines Plasmas ist die Vernachlässigung von Stößen einzelner Teilchen untereinander (ähnlich wie bei einem idealen Gas). Die Funktion $f_j(\mathbf{x}, \mathbf{v}, t)$ beschreibe die Position \mathbf{x} und die Geschwindigkeit \mathbf{v} eines Teilchens der Spezies j mit der Ladung q_j und Masse m_j (Elektronen Index e oder Ionen i) im Phasenraum (\mathbf{x}, \mathbf{v}) als Funktion der Zeit t . Die Forderung, dass das Volumen des Phasenraums zeitlich konstant sein muss, also keine Partikel vernichtet oder erzeugt werden, führt auf die sogenannte Vlasov-Gleichung [Kru88]:

$$\frac{\partial f_j}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla_{\mathbf{x}} f_j + \frac{q_j}{m_j} \left(\mathbf{E} + \frac{\mathbf{v} \times \mathbf{B}}{c} \right) \cdot \nabla_{\mathbf{v}} f_j = 0 \quad (2.2)$$

Dabei bezeichnet \mathbf{E} das elektrische Feld und \mathbf{B} die magnetische Induktion. Zusammen mit den Maxwell-Gleichungen beschreibt die Vlasov-Gleichung das stoßfreie Plasma vollständig.

¹In der Plasmaphysik wird die Temperatur üblicherweise in eV angegeben: $1 \text{ eV}/k_B = 11604,5 \text{ K}$

2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen

In der Praxis benötigt man häufig eine einfachere Beschreibung, die man durch eine Mittelung über die Geschwindigkeiten einzelner Teilchen einer Sorte erhalten kann. Dazu führt man die sogenannten Geschwindigkeitsmomente der Verteilung ein, die die Teilchendichte n_j und die mittlere Geschwindigkeit $\bar{\mathbf{v}}_j$ ergeben [Kru88]:

$$n_j = \int f_j(\mathbf{x}, \mathbf{v}, t) d\mathbf{v} \quad (2.3)$$

$$n_j \bar{\mathbf{v}}_j = \int \mathbf{v} f_j(\mathbf{x}, \mathbf{v}, t) d\mathbf{v} \quad (2.4)$$

Eine Integration der Vlasovgleichung über die Geschwindigkeit und die Benutzung des ersten Momentes der Verteilung ergibt nach einigen Umformungen [Att00]:

$$\frac{\partial n_j}{\partial t} + \nabla_x \cdot (n_j \bar{\mathbf{v}}_j) = 0 \quad (2.5)$$

Diese Gleichung ist in der Strömungsmechanik auch unter dem Namen Kontinuitätsgleichung bekannt und beschreibt die Teilchenerhaltung einer bestimmten Sorte j . Analog ergibt sich aus der Integration des Produktes von Vlasovgleichung und Geschwindigkeit $\bar{\mathbf{v}}_j$ über die Geschwindigkeit unter Berücksichtigung des zweiten Verteilungsmomentes [Att00]:

$$m_j \left(\frac{\partial}{\partial t} + \bar{\mathbf{v}}_j \cdot \nabla_v \right) \bar{\mathbf{v}}_j = -\frac{1}{n_j} \nabla_x p_j - e(\mathbf{E} + \bar{\mathbf{v}}_j \times \mathbf{B}) \quad (2.6)$$

Die Größe p_j bezeichnet den Elektronen- bzw. Ionendruck. Dies ist ein Analogon zur reibungsfreien Navier-Stokes Gleichung. Da die Gleichungen (2.3) und (2.4) diese Ähnlichkeit mit Gleichungen der Hydrodynamik aufweisen, nennt man die gemachte Näherung auch das Zwei-Flüssigkeits-Modell. Dieses Modell wird wieder vervollständigt durch die Maxwell-Gleichungen im Vakuum, die das elektrische Feld \mathbf{E} und die magnetische Induktion \mathbf{B} mit der Ladungs- und Stromdichte ρ und \mathbf{J} verknüpfen [Kru88]:

$$\operatorname{div} \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.7)$$

$$\operatorname{div} \mathbf{B} = 0 \quad (2.8)$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = 0 \quad (2.9)$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{B} - \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = \mu_0 \mathbf{J} \quad (2.10)$$

Dabei sind $\rho = \sum_j n_j q_j$, $\mathbf{J} = \sum_j n_j q_j \bar{\mathbf{v}}_j$ und μ_0 die magnetische Permeabilität.

2.2. Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in einem Plasma

Für das Verständnis der Wechselwirkung eines Plasmas mit Laserstrahlung hat die Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen in einem Plasma entscheidende Bedeutung. Als Ausgangspunkt einer genaueren Untersuchung kann das Zwei-Flüssigkeits-Modell dienen. Dabei

2.3. Absorption von Laserpulsen in einem Plasma

betrachtet man nur die Gleichungen für die Elektronen, da die Ionen bei den hohen Frequenzen einer Lichtwelle als unbeweglich gelten können. Für transversale Wellen geringer Intensität vereinfacht sich dabei der Stromterm in den Maxwell-Gleichungen (2.7)–(2.10) linear zu $\mathbf{J} = -en_e\bar{\mathbf{v}}_e$ [Att00]. Ebenso kann man alle nichtlinearen Terme in den Geschwindigkeitsmomenten vernachlässigen. Die verbleibenden Terme des zweiten Moments in Gleichung (2.4) führen zu einer einfachen Bewegungsgleichung der Elektronen im Plasma [Att00]:

$$m_e \frac{\partial \bar{\mathbf{v}}_e}{\partial t} = -e\mathbf{E} \quad (2.11)$$

Unter Benutzung dieser Gleichung ergibt sich aus den Maxwell-Gleichungen folgende Wellengleichung für elektromagnetische Wellen in einem Plasma [Att00]:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} + \omega_p^2 - c^2 \nabla^2 \right) \mathbf{E} = 0 \quad (2.12)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit c und der Plasmafrequenz

$$\omega_p = \left(\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2} . \quad (2.13)$$

Die Plasmafrequenz ist wie die Debyelänge eine wichtige Kenngröße eines Plasmas, die die kollektive Elektronenbewegung beschreibt und der natürlichen Schwingungsfrequenz der Elektronen in einem Plasma entspricht. Für eine ebene elektromagnetische Welle der Form $\mathbf{E} = E_0 \exp(-i(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{x}))$ folgt aus Gleichung (2.12) die Dispersionsrelation [Att00]

$$\omega^2 = \omega_p^2 + k^2 c^2 . \quad (2.14)$$

Sie unterscheidet sich von der Dispersionsrelation im Vakuum durch den Summanden ω_p^2 . Die Bedingung $\omega = \omega_p$ definiert dabei die sogenannte kritische Dichte, wenn man die Formel (2.13) für ω_p einsetzt und nach n_e auflöst [Att00]:

$$n_{kr} \equiv \frac{\epsilon_0 m \omega^2}{e^2} \quad (2.15)$$

Der Begriff „kritische Dichte“ wurde deshalb gewählt, da für eine elektromagnetische Welle mit $\omega < \omega_p$ der Wert k imaginär wird. Das bedeutet, dass die Welle an einem Plasma mit einer Elektronendichte $n_e > n_{kr}$ (*überdichtetes Plasma*) total reflektiert wird. Nur für $\omega > \omega_p$ kann sich eine Welle in einem *unterdichten Plasma* mit $n_e < n_{kr}$ ausbreiten. Die Brechzahl eines solchen Plasmas ergibt sich aus Gleichung (2.14) zu [Att00]:

$$n = \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}} \quad (2.16)$$

2.3. Absorption von Laserpulsen in einem Plasma

Im Labor können Plasmen hergestellt werden, indem man Energie zur Erzeugung freier Elektronen und Ionen aufbringt. Dies kann auf unterschiedliche Weise geschehen. Im Rahmen

2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen

dieser Arbeit wird die Erzeugung eines Plasmas durch Laserstrahlung untersucht (*laserinduziertes Plasma*). Dazu fokussiert man einen hochenergetischen, im allgemeinen gepulsten Laserstrahl auf ein sogenanntes Target. In diesem Kapitel sollen die Mechanismen erläutert werden, die zur Plasmaentstehung führen und für die Einkopplung von Laserenergie in das Plasma verantwortlich sind.

2.3.1. Multiphotonen- und Tunnelionisation

Der Beginn der Wechselwirkung von Laserstrahlung mit einem Targetmaterial, also der Prozess der eigentlich Plasmaerzeugung, bildet die Ionisation von Atomen oder Molekülen. Dieser Ionisationsprozess kann mit Hilfe von zwei unterschiedlichen physikalischen Modellen beschrieben werden. Im ersten Modell wird die Ionisation durch die gleichzeitige Absorption von mehreren Photonen hervorgerufen. Die Energie eines einzelnen Laserphotons ist i.a. nicht ausreichend, man spricht daher auch von Multiphotonenionisation. Im zweiten Modell erfolgt die Ionisation durch quasistatische elektrische Feldionisation. Dabei führt eine Überlagerung des Coulombfeldes eines Atomkerns mit dem äußeren elektrischen Laserfeld zu einer Erniedrigung der Barriere des Coulombpotenzials, so dass vorher gebundene Zustände frei werden oder die Wahrscheinlichkeit für einen Tunnelprozess eines Elektrons aus dem Potenzial wesentlich erhöht wird. Deshalb nennt man diesen Prozess auch Tunnelionisation.

Der Keldysh Parameter γ [Kel65] beschreibt den Übergang zwischen dem Bereich der Multiphotonenionisation und dem Bereich der Tunnelionisation:

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_I}{2U_p}} \quad (2.17)$$

mit dem Ionisierungspotenzial E_I und dem ponderomotiven Potenzial $U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2}$. Dieses Potenzial bezeichnet die zeitgemittelte kinetische Energie, die ein Elektron aufgrund seiner Zitterbewegung im oszillierenden elektrischen Feld besitzt. Für $\gamma \gg 1$ überwiegt die Multiphotonenionisation, während für $\gamma \ll 1$ die Tunnelionisation dominiert. Da man jedoch auch wesentlich höhere Ionisationszustände beobachten kann, deren Existenz durch die zwei Ionisationsmodelle nicht erklärt werden können, müssen weitere Prozesse für die Ionisation in einem Plasma relevant sein.

2.3.2. Stoßabsorption (Inverse Bremsstrahlung)

Der wichtigste Wechselwirkungsmechanismus zwischen Plasma und Laserfeld bei niedrigen bis mittleren Intensitäten ($I < 10^{15}$ W/cm² für 1 μ m Laserwellenlänge) [BCK91] ist die sogenannte Stoßabsorption. Wiederum bietet das Zwei-Flüssigkeits-Modell eine Basis für eine theoretische Betrachtung, wenn man in der Bewegungsgleichung für Elektronen (zweites Geschwindigkeitsmoment Gleichung (2.4)) einen Stoßterm berücksichtigt, der die Stoßfrequenz zwischen Elektronen und Ionen ν_{ei} enthält [Att00, Kru88]:

$$m_e \frac{\partial \bar{\mathbf{v}}_e}{\partial t} = -e\mathbf{E} - m\nu_{ei}\bar{\mathbf{v}}_e \quad (2.18)$$

Dadurch erhält man eine modifizierte Dispersionsrelation (für $\nu_{ei} \ll \omega$):

$$\omega^2 = \omega_p^2 + k^2 c^2 - i\omega_p^2 \frac{\nu_{ei}}{\omega^2} \quad (2.19)$$

2.3. Absorption von Laserpuls in einem Plasma

Der Realteil entspricht der Lösung ohne Stöße. Der negative Imaginärteil bedeutet, dass die elektromagnetische Welle während ihrer Ausbreitung im unterdichten Plasma gedämpft wird. Dabei induziert die Welle Elektronenoszillationen, deren Energie über die Stöße der Elektronen mit den Ionen zu einer Erhöhung der mittleren Elektronenenergie führt. Die Elektronentemperatur im Plasma wird also erhöht, und ebenfalls über Stöße mit den Ionen können nun auch höhere Ionisierungsstufen erzeugt werden.

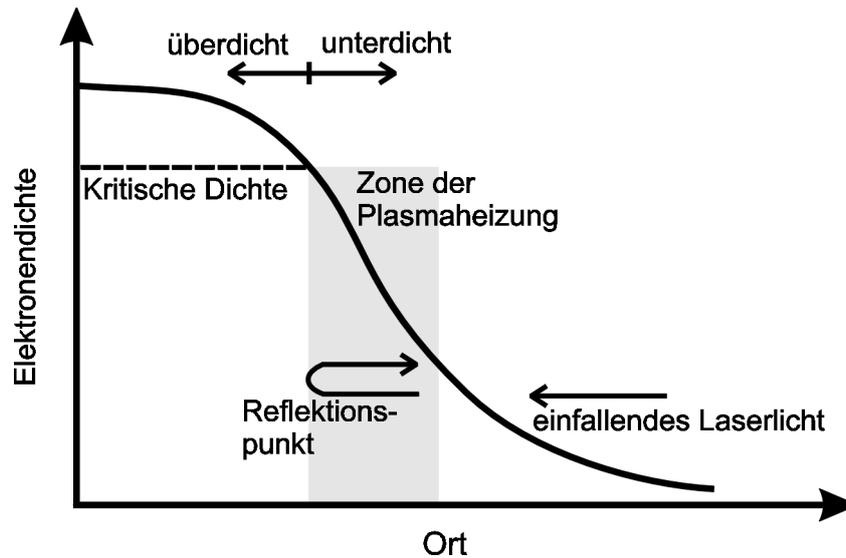


Abbildung 2.1.: Eindimensionale Illustration der Stoßabsorption

Dieser Mechanismus ist für die Erzeugung heißer Plasmen von entscheidender Bedeutung und wird als Stoßabsorption oder auch Inverse Bremsstrahlung bezeichnet, in Anlehnung an den umgekehrten Prozess der Bremsstrahlung, bei dem kinetische Elektronenenergie in Strahlungsenergie umgewandelt wird. Abbildung 2.1 zeigt den Prozess schematisch. Ein Laserpuls trifft auf ein Plasma mit einem Elektronendichtegradienten. Beim Durchgang durch das unterdichte Plasma wird die Lichtwelle gedämpft und heizt das Plasma über Inverse Bremsstrahlung auf. Die Welle kann sich aber nur bis zur kritischen Dichte im Plasma ausbreiten und wird dort reflektiert. Im Bereich des Reflexionspunktes ist die Übertragung von Energie aus dem Lichtfeld in das Plasma durch Stoßabsorption am effektivsten.

2.3.3. Resonanzabsorption

Trifft eine elektromagnetische Welle nicht senkrecht auf ein inhomogenes Plasma mit Dichtegradientem, ist der Reflexionspunkt nicht mehr durch $n_e = n_{kr}$ gegeben, sondern durch $n_e = n_{kr} \cos \alpha$ [Att00], wobei α der Einfallswinkel zur Targetnormalen ist. Für eine polarisierte Welle ergibt sich eine Komponente des elektrischen Feldes, die in Richtung des Dichtegradienten zeigt. Diese führt dazu, dass die Schwingungen der Elektronen im Plasma mit ω_p resonant angeregt werden können, und zwar genau bei $n_e = n_{kr}$. Auch in diesem Fall, der Resonanzabsorption genannt wird, wird Energie aus dem Strahlungsfeld in das Plasma eingekoppelt. Allerdings ist dieser Prozess stoßfrei. Besonders effektiv ist dieser Mechanis-

2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen

mus für hohe Laserintensitäten ($I > 10^{15} \text{ W/cm}^2$) und steile Dichtegradienten [BCK91], die vorzugsweise mit Laserpulsdauern $< \text{ns}$ erzeugt werden können.

2.4. Plasmaexpansion

Eine weitere wichtige Größe eines Laserplasmas ist die Expansionsgeschwindigkeit. Diese Geschwindigkeit wird durch die Ionenmasse und die Temperatur der Elektronen (i.a. höher als die der Ionen) bestimmt. Mit Hilfe des Zwei-Flüssigkeits-Modells kann die Geschwindigkeit als isotherme Expansion einer heißen Flüssigkeit aus Elektronen oder Ionen abgeschätzt werden. Unter der Voraussetzung, dass die Expansionsgeschwindigkeit der Elektronen durch die großen Ionenmassen m_i begrenzt wird, folgt für $T_e \gg T_i$ [Att00]:

$$v_{exp} = \sqrt{\left(\frac{Z\kappa k T_e}{m_i}\right)} \quad (2.20)$$

Dabei bezeichnen Z den mittleren Ladungszustand des Plasmas und κ den Adiabatenexponenten (= $5/3$ für einatomige Systeme). Die Expansionsgeschwindigkeit sollte einen entscheidenden Einfluss auf die Absorption von Laserpulsen haben, da durch die Expansion ein Dichtegradient entsteht. Die Steilheit des Dichtegradienten wird durch die sogenannte Skalenlänge L beschrieben [Att00]:

$$L = -\frac{n_i}{\partial n_i / \partial x} = v_{exp} \cdot \tau \quad (2.21)$$

Diese ist mit der Pulsdauer τ des Lasers über die Expansionsgeschwindigkeit verknüpft. Um eine effektive Plasmaheizung durch Stoßabsorption zu erhalten, sollte diese Skalenlänge im Bereich der Absorptionslänge l_{abs} einer Lichtwelle im unterdichten Plasma liegen [Att00]:

$$l_{abs} = \frac{n_c v_g}{n_e v_{ei}} \quad (2.22)$$

Die Absorptionslänge ist gegeben durch einen $1/e$ Abfall der Lichtintensität, v_g ist die Gruppengeschwindigkeit der Welle. Für eine Laserwellenlänge von $1 \mu\text{m}$, wie sie z.B. der in dieser Arbeit verwendete Nd:YLF-Laser (Abschnitt 4.3.1) besitzt, erwartet man eine effektive Inverse Bremsstrahlung für Pulsdauern im Bereich von Nanosekunden [Att00, BCK91].

2.5. Strahlungsemission eines laserinduzierten Plasmas

Durch das Abbremsen schneller Elektronen und die Rekombination von Elektronen mit Ionen verliert das Plasma Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung in einem weiten Spektralbereich. Die Charakteristik des vom Plasma emittierten Spektrums wird dabei im wesentlichen durch die Einstrahlungsbedingungen des Lasers und die Wahl des Targetmaterials bestimmt. Dies soll im folgenden näher erläutert werden.

2.5. Strahlungsemission eines laserinduzierten Plasmas

2.5.1. Planck-Limit

Die abgestrahlte Leistung dP eines Systems pro Flächenelement dA in ein Raumwinkelintervall $d\Omega$, welches sich im vollständigen thermodynamischen Gleichgewicht (VTG) mit der Umgebung befindet, wird durch das Planck-Gesetz für die Strahlung eines schwarzen Körpers beschrieben [Kry93]:

$$\frac{dP}{d\lambda d\Omega dA} = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{hc/\lambda k_B T} - 1} \quad (2.23)$$

Dabei ist h das Plancksche Wirkungsquantum und c die Lichtgeschwindigkeit. Die Planck-Kurve stellt ein oberes Limit für die erreichbare spektrale Strahlungsdichte eines heißen Plasmas dar, da dieses sich nicht im VTG befindet [SW92]. Somit unterscheidet sich auch die spektrale Verteilung der Strahlung eines Plasmas von der eines Planck-Strahlers (Abbildung 2.2).

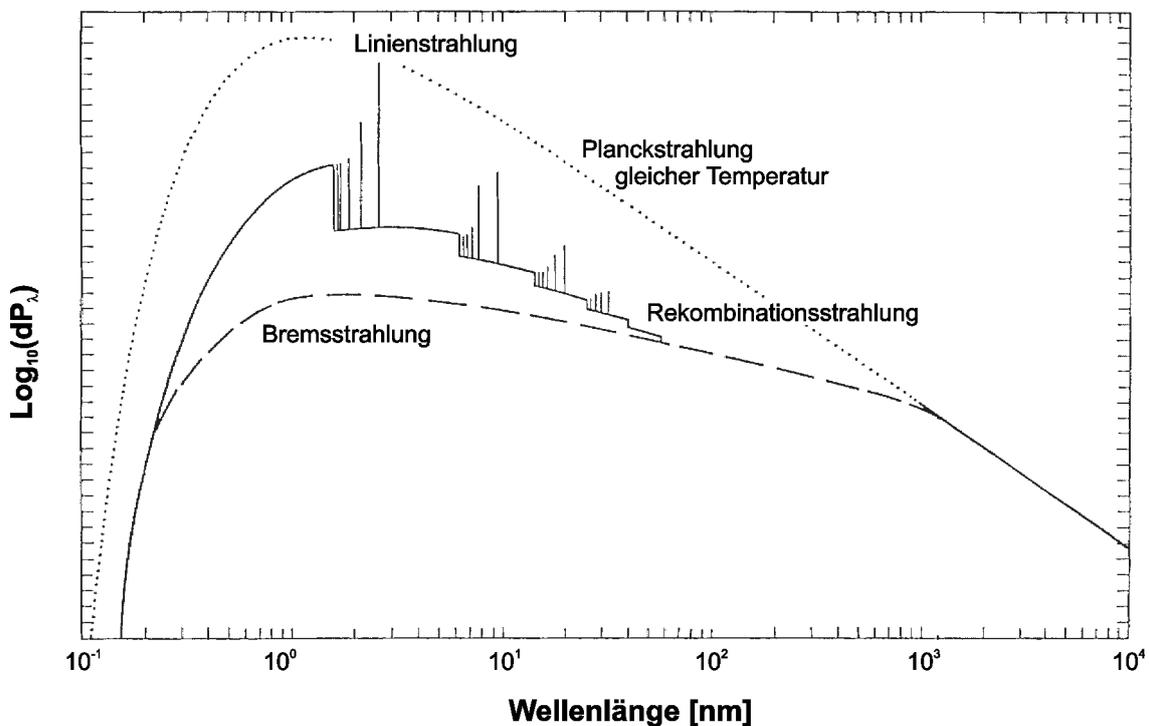


Abbildung 2.2.: Theoretisches Emissionsspektrum eines Stickstoffplasmas bei $T_e = 200$ eV. Zum Vergleich ist das Spektrum eines Planck-Strahlers gleicher Temperatur gezeigt. Nach [Leb]

Dennoch kann der Vergleich eines Plasmas mit einem schwarzen Körper hilfreich sein, ist man daran interessiert, die Strahlung in einem speziellen Spektralbereich zu maximieren. Dazu betrachtet man das Maximum der Planckschen Strahlungskurve, welches sich mit dem Wienschen Verschiebungsgesetz in Abhängigkeit der Temperatur berechnen lässt [SW92]:

$$\lambda_{max} = \frac{2,9 \cdot 10^6 \text{ nm} \cdot \text{K}}{T} \quad (2.24)$$

2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen

Zu einer vorgegebenen Wellenlänge lässt sich damit eine Temperatur berechnen. Ist diese bekannt, kann man mit dem Stefan-Boltzmann-Gesetz für Planck-Strahler die Leistungsdichte P/A (= Intensität I) bestimmen, die nötig ist, um ein derartiges Plasma zu erzeugen [GV95]:

$$\frac{P}{A} = \sigma \cdot T^4 \quad (2.25)$$

Aus diesen Überlegungen lässt sich grob abschätzen, welche Intensität im Fokus zur Erzeugung eines Plasmas mit einer Emission im gewünschten Spektralbereich herrschen muss.

2.5.2. Strahlungsmechanismen

Es gibt hauptsächlich vier Mechanismen, die bei einem laserinduzierten Plasma zur Strahlungserzeugung führen.

- frei-frei-Übergänge: Schnelle, freie Elektronen werden im Feld positiv geladener Teilchen abgebremst und emittieren dabei Strahlung, die deshalb auch Bremsstrahlung genannt wird. Da der Energiebetrag, den die Elektronen dabei verlieren, nur durch ihre maximale kinetische Energie nach oben hin begrenzt ist, entsteht ein kontinuierliches Spektrum analog dem einer klassischen Röntgenröhre, welches bei einer Grenzenergie abbricht.
- Innerschalenionisation: Ebenfalls durch Stoßprozesse von schnellen Elektronen mit nicht ionisierten Atomen kann ein Elektron aus einer inneren Schale entfernt werden. Das Auffüllen des freigewordenen Zustandes durch Elektronen aus höheren Schalen führt wie bei einer Röntgenröhre zur Emission von sogenannter charakteristischer Linienstrahlung.
- frei-gebunden-Übergänge: Freie Elektronen rekombinieren mit Ionen, indem sie in einen gebundenen Zustand übergehen. Die sogenannte Rekombinationsstrahlung, die dabei emittiert wird, führt ebenfalls zu einem Kontinuum, da die Elektronen vor der Rekombination unterschiedliche kinetische Energien besitzen können.
- gebunden-gebunden-Übergänge: In höheren Schalen gebundene Elektronen fallen auf freie, niedriger gelegene Energieniveaus und emittieren dabei Strahlung, deren Energie der Energiedifferenz der Zustände entspricht. Dies führt im Spektrum zu einzelnen, schmalbandigen Emissionslinien, man spricht auch von Linienstrahlung. Die Wellenlänge λ der einzelnen Linien lässt sich durch die Rydberg-Formel beschreiben [MK94]:

$$\frac{1}{\lambda} = R_{\infty} \cdot (Z - \sigma)^2 \cdot \left(\frac{1}{m^2} - \frac{1}{n^2} \right) \quad (2.26)$$

Es sind R_{∞} die Rydbergkonstante, Z die Kernladungszahl, σ die Abschirmkonstante und n, m die Hauptquantenzahlen der beteiligten Niveaus. Die Breite der Spektrallinien setzt sich dabei zusammen aus der natürlichen Linienbreite, der Dopplerverbreiterung und der Druckverbreiterung [MK94]. Die Linienbreite der Strahlung aus laserinduzierten Plasmen ist im wesentlichen durch die Doppler- und Starkverbreiterung gegeben. Bei mittleren Laserintensitäten ($\leq 10^{16}$ W/cm²) beträgt die Monochromasie einer Linie im EUV- und weichen Röntgenbereich $\lambda/\Delta\lambda \geq 1000$ [WHN⁺97, SMN⁺98].

2.5. Strahlungsemission eines laserinduzierten Plasmas

In Abbildung 2.2 kann man erkennen, wie sich das Spektrum eines Plasmas aus den Beiträgen der unterschiedlichen Strahlungsmechanismen zusammensetzt und sich dadurch vom Spektrum eines schwarzen Strahlers gleicher Temperatur signifikant unterscheidet. Man erkennt, dass nur in einzelnen Emissionslinien bestimmter Ionensorten die Planck-Kurve fast erreicht wird. Die Existenz einer Ionensorte ist dabei von der Elektronentemperatur T_e im Plasma abhängig, die wiederum eine Abhängigkeit von der Laserintensität besitzt [Pue70]:

$$T_e \sim I^{4/9} \quad (2.27)$$

Dies zeigt noch einmal, dass das emittierte Spektrum von der Intensität abhängig ist, daher soll in der vorliegenden Arbeit insbesondere der Einfluss dieses Parameters und der Laserpulsdauer auf die Emission von verschiedenen Laserplasmen untersucht werden.

2.5.3. Abschätzungen zur Konversionseffizienz eines laserinduzierten Plasmas

Ein wichtiger Wert für die Charakterisierung der Röntgenemission aus einem laserinduzierten Plasma ist die Konversionseffizienz η . Diese ist definiert als Quotient aus Energie der emittierten Röntgenstrahlung $E_{x\text{-ray}}$ in einer gewissen spektralen Bandbreite und verwendeter Laserpulsenergie E_{Laser} :

$$\eta = \frac{E_{x\text{-ray}}}{E_{\text{Laser}}} \quad (2.28)$$

Der Wert beschreibt die Effektivität der Konversion von aufzubringender Laserenergie in Röntgenstrahlung, die man für ein bestimmtes Experiment nutzen möchte. Damit eignet er sich als Vergleichswert für verschiedene Plasmaquellen. Darüber hinaus ermöglicht die Konversionseffizienz die Berechnung der von der Quelle emittierten mittleren Röntgenleistung $P_{x\text{-ray}}$ (= Photonen/Zeiteinheit) aus der mittleren Leistung des Lasers P_{Laser} :

$$P_{x\text{-ray}} = \eta \cdot P_{\text{Laser}} \quad (2.29)$$

Mit dieser Formel kann man die Röntgenleistung der Quelle zu höheren Laserleistungen skalieren, sofern die Einstrahlbedingungen (Intensität, Pulsdauer) konstant gehalten werden.

Eine grobe Abschätzung der zu erwartenden Konversionseffizienzen kann aufgrund einer Argumentation erfolgen, die sich aus Gründen der Energieerhaltung ergibt. Um ein Plasma zu erzeugen, das Photonen der gewünschten Energie $h\nu$ emittiert, benötigt man mindestens die Energie zur Erzeugung des Grundzustandes Z_i des Ions, das das Photon emittiert. Diese ist gegeben durch die Summe der Ionisationspotenziale $\sum_{i=1}^{Z_i} E_I^i$ und der Energie zur Anregung des emittierenden Zustands, die mindestens $h\nu$ beträgt. Dazu kommt noch die Energie, um Ionen und Elektronen auf eine Temperatur T_j zu bringen. Damit beträgt die minimal notwendige Energie E_{min} pro emittierendem Ion [LBJ⁺01]:

$$E_{\text{min}} \approx \sum_{i=1}^{Z_i} E_I^i + h\nu + \frac{3}{2}k_B T_i + \frac{3}{2}Z_i k_B T_e \quad (2.30)$$

Die Konversionseffizienz kann man somit abschätzen zu:

$$\eta \approx \frac{h\nu}{E_{\text{min}}} \quad (2.31)$$

2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen

Mit Blick auf die Effizienz ist es sinnvoll, den niedrigsten möglichen Grundzustand zu verwenden. Allerdings liefert die Abschätzung eine obere Grenze für die Effizienz, entsprechende Werte können in der Praxis nicht erreicht werden. Hat man die Energie zur Erzeugung eines Ionisationszustandes aufgebracht, ist es nämlich nicht möglich, nur gezielt einen Übergang anzuregen. Diese Tatsache kann in der Formel für die minimal aufzubringende Energie folgendermaßen berücksichtigt werden:

$$E_{min} \approx \sum_{i=1}^{Z_i} E_I^i + \sum_{j=\alpha}^{\omega} \gamma_j h\nu_j + \frac{3}{2} k_B T_i + \frac{3}{2} Z_i k_B T_e \quad (2.32)$$

Der Summand $\sum_{j=\alpha}^{\omega} \gamma_j h\nu_j$ bezeichnet die Energie aller möglichen Übergänge des Iones, die zu einer Emission führen können. Dabei berücksichtigt ein Gewichtungsfaktor γ_j , dass die relative Intensität verschiedener Spektrallinien in einem festen Verhältnis zueinander stehen.

Diese Änderung sollte zu einer wesentlichen Verbesserung des Modells führen, obwohl es noch immer eine Obergrenze für die mögliche Konversionseffizienz darstellt. Inwieweit die gemessenen Werte von den theoretischen Werten abweichen, wird in den Kapiteln 4 und 5 zur EUV-Emission von Laserplasmen diskutiert.

2.5.4. Wahl des Targetmaterials und Targetsystems

Das von einem Laserplasma emittierte Strahlungsspektrum wird neben den Lasereigenschaften durch das Targetmaterial bestimmt. Der entscheidende Parameter ist hier die Kernladungszahl Z . Ist man z.B. an Linienstrahlung interessiert, wählt man entsprechend der Wellenlänge in Gleichung (2.26) ein Z passend zu hohen Ionisationsstufen ($n, m = 1, 2, 3$). Ist dagegen ein kontinuierliches Spektrum erwünscht, sollte man ein Material mit einem möglichst hohen Z wählen, um einen starken und homogenen Bremsstrahlungsuntergrund zu bekommen, da die Bremsstrahlung mit steigendem Z zunimmt [TD99]. Alternativ kann man ein Element wählen, bei dem im gewünschten Spektralbereich die Linien so zahlreich sind und dicht beieinander liegen (gilt für niedrige Ionisationsstufen), dass sie vom Monochromator nicht mehr aufgelöst werden können. Man spricht in diesem Fall von einem Quasi-Kontinuum. Durch einen Wechsel des Targetmaterials ist es also möglich, die Plasmaquelle für eine bestimmte Anwendung zu optimieren.

Neben dem Material ist die Wahl der Form, in der es vorliegt, im folgenden Targetsystem genannt, von entscheidender Bedeutung. Grundsätzlich kann das Targetmaterial in den drei möglichen Aggregatzuständen vorliegen. Man unterscheidet deshalb beim Targetsystem zwischen Festkörper-, Flüssigkeits- und Gastargets. Die Erzeugung eines Plasmas geschieht im Vakuum, da die im Bereich des Laserfokus auftretenden Intensitäten hoch genug sind, um einen Luftdurchbruch zu erzeugen. Es ist somit in Luft nicht möglich, das Target entsprechend aufzuheizen. Außerdem ist die Absorption in Luft im Bereich weicher Röntgenstrahlen so groß, dass diese im Vakuum über längere Strecken geführt werden muss. Das Targetsystem sollte also zwingend im Vakuum verwendbar sein.

Am ehesten gilt dies für das Festkörpertarget [TD99], es kann aufgrund des niedrigen Dampfdrucks von Festkörpern problemlos ins Vakuum gebracht werden. Allerdings muss man sicherstellen, dass jeder Laserpuls eine „frische“ Stelle auf dem Target trifft. Schießt man dagegen immer auf eine feste Stelle, nimmt die Emission nach einigen Laserpulsen drastisch

2.5. Strahlungsemission eines laserinduzierten Plasmas

ab, da jeder Puls einen kleinen Krater im Material erzeugt. Bei darauffolgenden Schüssen befindet sich das Material nicht mehr optimal im Fokus. Durch eine schnelle Bewegung des Targets kann dafür gesorgt werden, dass auch die Pulse eines Lasers mit hoher Repetitionsrate immer eine neue Targetstelle treffen. Das größte Problem bei Festkörpermaterialien ist das sogenannte Debris. Beim Auftreffen eines Laserstrahls auf einen festen Körper entstehen Schockwellen, die dazu führen, dass an der Targetoberfläche Teilchen herausgeschleudert werden [BOS95]. Außerdem kann Debris durch die thermische Verdampfung des Materials entstehen. Diesen Partikelstrom, der zusätzlich auch aus im Plasma erzeugten Ionen bestehen kann, bezeichnet man als Debris. Debris aber kann zur Zerstörung von empfindlichen röntgenoptischen Komponenten führen und ist das größte Problem bei der Verwendung von Festkörpertargets.

Das Debrisproblem kann drastisch gemindert werden, indem man Flüssigkeits- oder Gastargets verwendet. Beim Gastarget [FBPP93] lässt man über ein Ventil kurzzeitig einen Gaspuls ins Vakuum und schießt mit dem Laser in diese Gaswolke. Das Gas wird danach einfach abgepumpt, Debris entsteht lediglich in Form von einzelnen Atomen oder Ionen. Allerdings werden für ein Gastarget hohe Drücke von einigen 10 bar benötigt, um eine mittlere Atomdichte von 10^{19} Atomen/cm³ zu erhalten, die für eine effektive Absorption der Laserstrahlung notwendig ist. Eine lokal höhere Dichte in einem Gaspuls kann aber erreicht werden, indem man die Expansionsbedingungen des Gases ins Vakuum so wählt, dass die Atome große Cluster von einigen 10000 Atomen bilden [DDR⁺96]. Dadurch erreicht man lokal eine Teilchendichte, die mit der eines Festkörpers vergleichbar ist.

Eine andere Alternative sind Flüssigkeitstargets [RH93, RTD⁺98], in denen die Atomdichte ebenfalls fast Festkörpurniveau erreicht. Ultradünne Flüssigkeitsstrahlen bzw. Tröpfchen mit einem Durchmesser im Bereich einiger 10 μm werden mit hohem Druck ins Vakuum gespritzt und der Laserstrahl auf ein solches Target fokussiert. Das auftretende Debris ist dabei um mehrere Größenordnungen geringer als bei Festkörpertargets, da die Ausdehnung des Targets ungefähr der Größe des Laserfokus entspricht, man spricht auch von einem *mass-limited* Target. Problematisch ist allerdings die Aufrechterhaltung des Vakuums und das Ausschleusen der Flüssigkeit aus dem Vakuum, in der Regel werden saugstarke Pumpen in Kombination mit differentiellen Pumpstrecken oder Kühlfallen benötigt. Dabei sorgt der Flüssigkeitsstrahl für eine ständige Targeterneuerung, jeder Laserpuls trifft auf eine neue Targetstelle. Normalerweise ist man nur an der Strahlung interessiert, die von einem bestimmten chemischen Element emittiert wird. Viele Flüssigkeiten bestehen aber aus verschiedenen Atomsorten, die effektive Teilchendichte einer einzelnen Sorte kann dadurch gering sein. Zur Maximierung der Röntgenemission sollte deshalb das Target idealerweise aus nur einem Element bestehen. Bei im Normalzustand gasförmigen Elementen erreicht man dies, indem man sie verflüssigt und so ein Kryo-Flüssigkeits-Target erhält [BRHW98]. Eine andere, experimentell weniger aufwendige Methode besteht darin, das Gas im Vakuum auf einer tiefkalten Oberfläche auszufrieren und auf diese Fläche den Laser zu fokussieren [LSWN98]. Die Dauer des Aufwachsens einer genügend dicken Schicht begrenzt aber die Repetitionsrate eines Kryo-Festkörpertargets, zudem entsteht Debris in Form von kleinen Eispartikeln.

2. Grundlagen laserinduzierter Plasmen

3. Aufbau der Diagnostik im weichen und harten Röntgenbereich

In diesem Kapitel werden die zur Charakterisierung der vom Plasma emittierten Strahlung sowohl im weichen als auch harten Röntgenbereich benutzten Werkzeuge vorgestellt. Sie bilden die Basis für die in dieser Arbeit beschriebenen Untersuchungen der spektralen Eigenschaften verschiedener laserinduzierter Plasmen in Abhängigkeit von verschiedenen Laserparametern oder Targetmaterialien und -systemen. Diese Messungen sind Grundlage für die Verwendung eines laserinduzierten Plasmas als Röntgenquelle für eine bestimmte Anwendung, aber auch für das grundlegende Verständnis der physikalischen Vorgänge im Plasma selbst. Dabei möchte man folgende Informationen über die Emission des Plasmas gewinnen:

- qualitativ: welche Charakteristik hat das Spektrum in einem Spektralbereich, d.h. dominiert Linienstrahlung oder erhält man ein Kontinuum
- quantitativ: wie viele Photonen emittiert das Plasma in einer relativen spektrale Bandbreite, wie ist die Monochromasie in einzelnen Linien, wie groß ist die strahlende Quellfläche, wie lang ist die Dauer der Röntgenemission

Als Größe für die quantitative Beschreibung der Emission eines laserinduzierten Plasmas dient die spektrale Pulsbrillanz B [WHN⁺97]:

$$B = \frac{\text{Zahl der Photonen}}{\text{Puls} \cdot \text{Raumwinkelintervall} \cdot \text{Quellfläche} \cdot \text{relative Bandbreite}} \quad (3.1)$$

Dabei ist die Verwendung der folgenden Einheiten gebräuchlich:

$$[B] = \frac{1}{\text{Puls} \cdot \text{sr} \cdot \text{mm}^2 \cdot 0,1\% \Delta\lambda/\lambda} \quad \text{oder} \quad \frac{1}{\text{Puls} \cdot \text{sr} \cdot \mu\text{m}^2 \cdot \text{pm}} \quad (3.2)$$

In den folgenden zwei Abschnitten werden Instrumente vorgestellt, mit denen man die Pulsbrillanz eines Laserplasmas im EUV- und weichen Röntgenbereich ($\lambda = 1\text{--}20 \text{ nm}$) messen kann. Danach wird ein Messwerkzeug erklärt, mit dem Spektren für härtere Strahlung aufgenommen werden können.

3.1. Spalt-Gitter-Spektrograph

Zur spektralen Zerlegung weicher Röntgenstrahlen benutzt man im allgemeinen Gitter als dispersive Elemente, die entweder in Transmission oder in Reflexion arbeiten. Dabei stellt ein Transmissionsgitter eine experimentell besonders einfache Methode zur spektralen Zerlegung des Lichtes dar. Neben dem Gitter benötigt man außerdem ein optisches Element, das ein Bild der Quelle auf dem Detektor erzeugt. Als einfachster Aufbau kann eine kleine

3. Aufbau der Diagnostik im weichen und harten Röntgenbereich

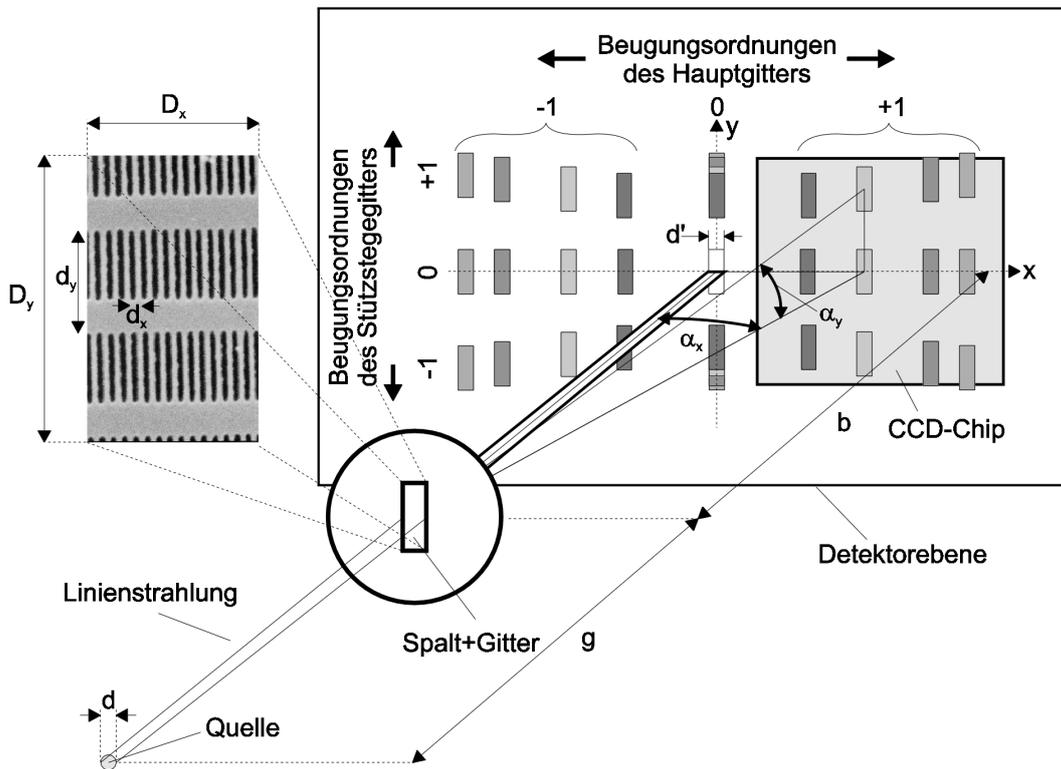


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung des Spalt-Gitter-Spektrographen. Links groß gezeigt ist eine elektronenmikroskopische Aufnahme eines Gitters. Nach [Ham97]

Blende verwendet werden, man erhält eine Lochkamera. Da aber lediglich in der Dispersionsrichtung des Gitters eine Abbildung nötig ist, wird bei dem benutzten Spektrographen ein Spalt verwendet. So lässt sich insgesamt mehr Licht sammeln. Vervollständigt wird der Spektrograph durch einen ortsauflösenden Detektor, in diesem Fall einer speziellen CCD-Kamera (Abschnitt 3.3.1). Der Spalt-Gitter-Spektrograph ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt.

Die Lage der Beugungsmaxima im Bild wird durch die Gitterformel beschrieben [BW80]:

$$\sin \alpha_\lambda = m \cdot \frac{\lambda}{d_x} \quad (3.3)$$

Dabei ist α_λ der Ablenkwinkel, $m = \pm 1, \pm 2, \pm 3 \dots$ die Beugungsordnung und d_x die horizontale Gitterkonstante. Die Wellenlängendifferenz der im Bild gerade noch zu trennenden Beugungsmaxima zweier benachbarter Linien, gegeben durch die Größe des Schattenwurfs in der Detektorebene, beträgt in geometrischer Näherung (vgl. Abbildung 3.1) [WRH⁺99]:

$$\Delta \lambda_{geo} = \frac{d_x}{m} \left(\frac{D_x + d}{g} + \frac{D_x}{b} \right) \quad (3.4)$$

mit der Spaltbreite D_x , dem Quelldurchmesser d , dem Abstand Quelle-Gitter g und dem Abstand Gitter-Detektor b . Das relative spektrale Auflösungsvermögen, erreichbar allerdings nur

3.1. Spalt-Gitter-Spektrograph

bei einer beugungsbegrenzten Abbildung der Quelle (mit einer Lochkamera nicht möglich), ist gleich der Anzahl der beleuchteten Gitterstege N [BW80]:

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_{\text{beu}}} = m \cdot N \quad (3.5)$$

Damit beträgt die erreichbare Auflösung

$$\Delta\lambda = \sqrt{\Delta\lambda_{\text{geo}}^2 + \Delta\lambda_{\text{beu}}^2} \quad (3.6)$$

Für geringe Auflösungen ist der Beitrag der geometrischen Auflösungsbeschränkung allerdings so groß, dass der Term für die beugungsbegrenzte Auflösung vernachlässigt werden kann. Um eine hohe Auflösung zu erreichen, muß nach Gleichung (3.4) die Gitterkonstante und die Quellgröße möglichst klein sein. Den Spalt sollte man ebenfalls klein wählen, aber nicht so klein, dass die beugungsbegrenzte Auflösung kleiner wird als die geometrische.

Das in dieser Arbeit benutzte System besteht aus einem Spalt mit einer Breite von $50 \mu\text{m}$ und einem Siliziumgitter mit einer Gitterkonstante von 100 nm [WRH⁺99]. Das relative spektrale Auflösungsvermögen beträgt damit im Bereich des Wasserfensters $\lambda/\Delta\lambda = 50\text{--}400$ bei Abständen g und b zwischen $30\text{--}150 \text{ cm}$. Das Gitter besitzt ein Strich-Lücke Verhältnis von ungefähr 1:1 und wird Elektronenstrahl-lithographisch hergestellt [Ham97]. Zur Erhöhung und Glättung des Beugungswirkungsgrades ist es mit einer 30 nm dicken Goldschicht bedampft. Als Beugungswirkungsgrad (BWG) bezeichnet man den Quotienten aus in eine Ordnung m abgebeugter Intensität I_m und insgesamt einfallender Strahlungsintensität I_0 einer Wellenlänge:

$$BWG_m(\lambda) = \frac{I_m(\lambda)}{I_0(\lambda)} \quad (3.7)$$

Aus Stabilitätsgründen besitzt das Gitter senkrecht zur eigentlichen Gitterstruktur (Hauptgitter) Stützstege mit einer Gitterkonstante von $d_y = 1 \mu\text{m}$ (Stützstegegitter), wodurch die

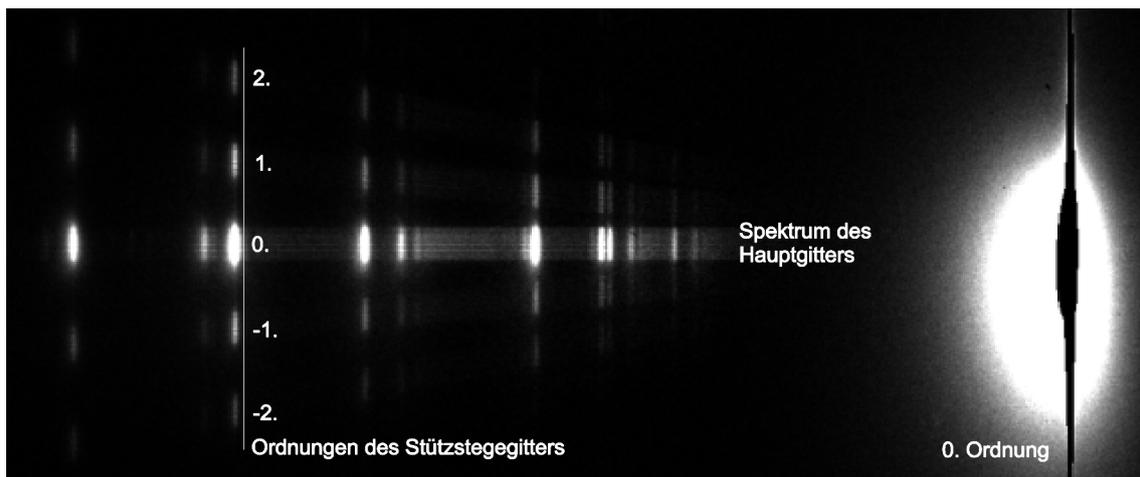


Abbildung 3.2.: Beispiel eines Spektrum eines Ethanoljettargets im Wellenlängenbereich $1\text{--}4 \text{ nm}$. Deutlich zu sehen sind die höheren Beugungsordnungen des Stützstegegitters. Zur Auswertung benutzt man die 0. Stützstegeordnung. [Vog99]

3. Aufbau der Diagnostik im weichen und harten Röntgenbereich

effektive Fläche des Hauptgitters um ca. 30% reduziert wird. Das Stützstegegitter ist aber für praktische Arbeiten von Vorteil, da die von ihm stammenden gemischten höheren Beugungsordnungen meist auch noch auf dem Detektor zu sehen sind (Abbildung 3.2) und so die schnelle spektrale Analyse des Bildes erleichtern. Ist die 0. Beugungsordnung des Hauptgitters bei höheren Wellenlängen nicht mehr auf dem Detektor zu sehen, kann aus dem Abstand der 0. und 1. Ordnung des Stützstegegitters die Wellenlänge bestimmt werden.

Bei der Aufnahme eines Spektrums ist es wichtig zu verhindern, dass sichtbare Strahlung in den Spektrographen gelangen kann. Diese kann entweder aus dem Plasma oder vom Laser stammen und würde ebenfalls detektiert werden und die Spektren verfälschen. Aus diesem Grund benutzt man dünne Filter aus Metall, die das sichtbare Licht unterdrücken, für die Röntgenstrahlung aber eine möglichst hohe Transmission besitzen. In Abbildung 3.3 ist die Transmission von zwei geeigneten Materialien gezeigt, es handelt sich um Aluminium und Zirkonium. Zirkonium wurde dabei für die Messungen im EUV-Bereich verwendet, während Aluminium für Spektren im weichen Röntgenbereich benutzt wurde.

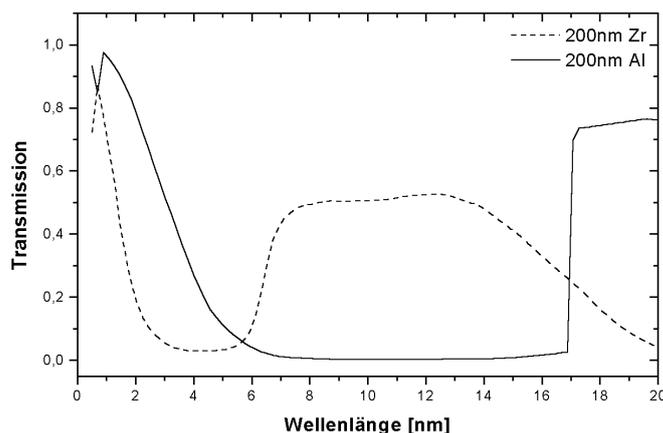


Abbildung 3.3.: Transmission von 200 nm dicken Filtern aus Zirkonium (gestrichelte Linie) und Aluminium (durchgezogene Linie) im Wellenlängenbereich von 0,5–20 nm [Gulb]

Um absolute Photonenzahlen messen zu können, muss der Beugungswirkungsgrad des Gitters für jede Wellenlänge bekannt sein. Ebenfalls bekannt sein muss die spektrale Empfindlichkeit des Detektors. Diese Werte können durch Kalibriermessungen ermittelt werden (siehe Abschnitt 3.4). Aus den Photonenzahlen des Spektrums und der Laserenergie E_{Laser} kann die Konversionseffizienz nach Gleichung (2.28) berechnet werden, da E_{x-ray} gegeben ist durch die Zahl der Photonen in einer relativen spektralen Bandbreite $\Delta\lambda/\lambda$ multipliziert mit der Photonenenergie $h\nu$.

Mit einem Spalt-Gitter-Spektrographen ist die direkte Messung der Pulsbrillanz Gleichung (3.1) nicht möglich, da er über die Quellgröße integriert und so lediglich die spektrale Strahldichte liefert. Für viele Anwendungen ist dieser Wert aber ausreichend, da der Quelldurchmesser keine kritische Größe darstellt. Ist man aber an dieser Größe interessiert, muss die Quelle ortsaufgelöst abgebildet werden, was im folgenden Abschnitt beschrieben wird.

3.2. Zonenplatten zur Quellgrößenmessung

Der einfachste Aufbau zur Messung der Größe einer Quelle im Röntgenbereich ist eine Lochkamera. Sind die zu messenden Quellen sehr klein (einige $10 \mu\text{m}$) oder möchte man eine hohe Ortsauflösung erreichen, kann man eine Zonenplatte anstatt einer Blende benutzen. Zonenplatten sind konzentrische Kreisgitter mit nach außen abnehmender Gitterkonstante und werden heutzutage in Röntgenmikroskopen als hochauflösende Optiken benutzt [TSRU98]. Ihre fokussierende Eigenschaft beruht auf dem physikalischen Effekt der Beugung. Damit ist die Brennweite einer Zonenplatte f_{zp} wellenlängenabhängig und lautet in quadratischer Näherung [Sor95]:

$$f_{zp}(\lambda) = \frac{r_n^2}{m \cdot n_{zp} \cdot \lambda} \quad (3.8)$$

Es bezeichnen r_n den Zonenplattenradius, $m = \pm 1, 2, \dots$ die Beugungsordnung und n_{zp} die Zahl der Zonen. Normalerweise benutzt man eine Zonenplatte in der +1. Beugungsordnung. Die beugungsbegrenzte Größe δ_{zp} des erzeugten Fokus ist dabei gegeben durch die Breite der äußersten Zone dr_n :

$$\delta_{zp} = 1,22 \cdot dr_n \quad (3.9)$$

Die Zonenplatte erzeugt ein räumlich stark vergrößertes Bild der Plasmaquelle auf dem CCD-Detektor (Abbildung 3.4). Die Abbildungsgleichung lautet wie bei einer Brechungslinse [BW80]

$$\frac{1}{f_{zp}} = \frac{1}{g} + \frac{1}{b} \quad (3.10)$$

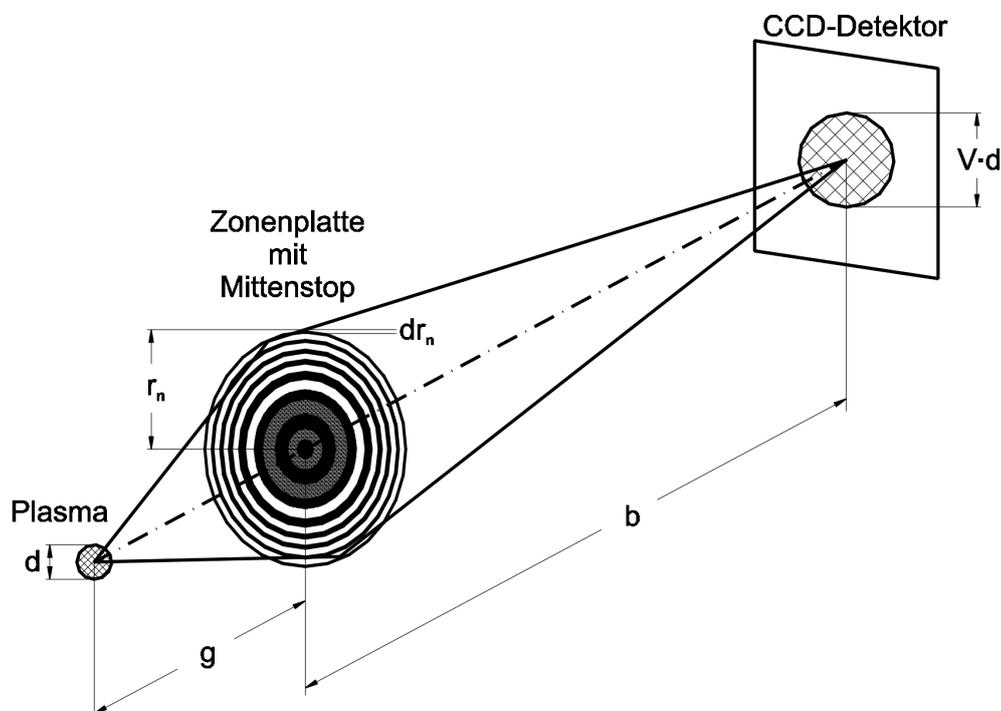


Abbildung 3.4.: Hochauflösende Abbildung mit einer Zonenplatte

3. Aufbau der Diagnostik im weichen und harten Röntgenbereich

Die Vergrößerung V ist gegeben durch die Gegenstandsweite g und Bildweite b :

$$V = \frac{b}{g} \quad (3.11)$$

Mit Hilfe dieser zwei Gleichungen kann man sich für eine gewünschte Wellenlänge die Geometrie eines Aufbaus bei vorgegebener Vergrößerung ausrechnen. Die mit einer solchen Anordnung erreichbare räumliche Auflösung ist in der Regel nicht beugungsbegrenzt, sondern durch die Pixelgröße der benutzten CCD-Kamera limitiert. Die beugungsbegrenzte Auflösung der benutzten Zonenplatte, einer Kondensorzonenplatte (Typ KZP7), beträgt ca. $\delta_{KZP7} \approx 60$ nm, wobei die Brennweite gegeben ist durch [HR98]:

$$f_{KZP7} = 201\text{mm} \cdot \frac{2,4\text{nm}}{\lambda} \quad (3.12)$$

3.3. Detektoren

3.3.1. Rückseitig belichtbare CCD-Kamera

Als ortsauflösender Detektor für EUV- und weiche Röntgenstrahlung benutzt man heutzutage einen speziellen CCD-Kamera Typ, dessen Eignung für diesen Spektralbereich erstmals in Röntgenmikroskopen nachgewiesen wurde [Wil94].

Normalerweise geschieht die Belichtung eines CCD (engl. charge coupled device) durch die Gatestruktur und SiO_2 -Schicht hindurch (frontseitig belichtete CCD). Die Absorption von Strahlung im UV- und weichen Röntgenbereich ist in diesen Schichten aber so groß, dass die Empfindlichkeit stark gemindert wird. Zudem können die im SiO_2 erzeugten Elektron-Loch-Paare zu einer unerwünschten Beeinflussung der Potenzialtöpfe führen. Deshalb wurden rückseitig gedünnte CCDs entwickelt, die von hinten belichtet werden können (Abbildung 3.5). Das Halbleitersubstrat wird dazu auf eine Dicke von 10-20 μm heruntergedünnt. Im Einsatz verhalten sich rückseitig belichtbare CCDs wie vorderseitig beleuchtete.

Die Zahl der erzeugten Ladungsträger im Halbleitersubstrat eines CCD ist proportional zur Zahl der eingefallenen Photonen, je nach Photonenenergie werden aber unterschiedlich viele Elektronen erzeugt. Daher sind CCDs für das absolute Messen von Photonenzahlen besonders geeignet. Weitere Vorteile eines CCD sind die auch im Röntgenbereich hohe Quanteneffizienz von über 60% und der große Dynamikbereich [Wil94]. Wie schon in Abschnitt 3.1 erwähnt, wurde das Komplettsystem aus Gitter und CCD-Kamera kalibriert, um Absolutmessungen durchführen zu können.

Die in den Experimenten verwendeten Kameras (Photometrics und Princeton Instruments) besitzen einen rückseitig gedünnten Chip (Tektronix TK 512 AB) mit einer Pixelmatrix von 512×512 quadratischen Elementen. Die Pixelgröße beträgt $24 \times 24 \mu\text{m}^2$, in jedem Pixel können etwa $4 \cdot 10^5$ Elektronen gespeichert werden, ohne die Proportionalität zwischen Zahl der auftreffenden Photonen und gespeicherten Elektronen zu verlieren. Um die Erzeugung thermischer Elektronen im Halbleiter zu minimieren, die zum Dunkelsignal beitragen, wird der Chip mit Hilfe eines Peltierelements auf eine Temperatur von $T = -40^\circ\text{C}$ gekühlt. Außerdem ist die Auslesefrequenz der Pixel auf 200 kHz begrenzt (Slow Scan CCD), was

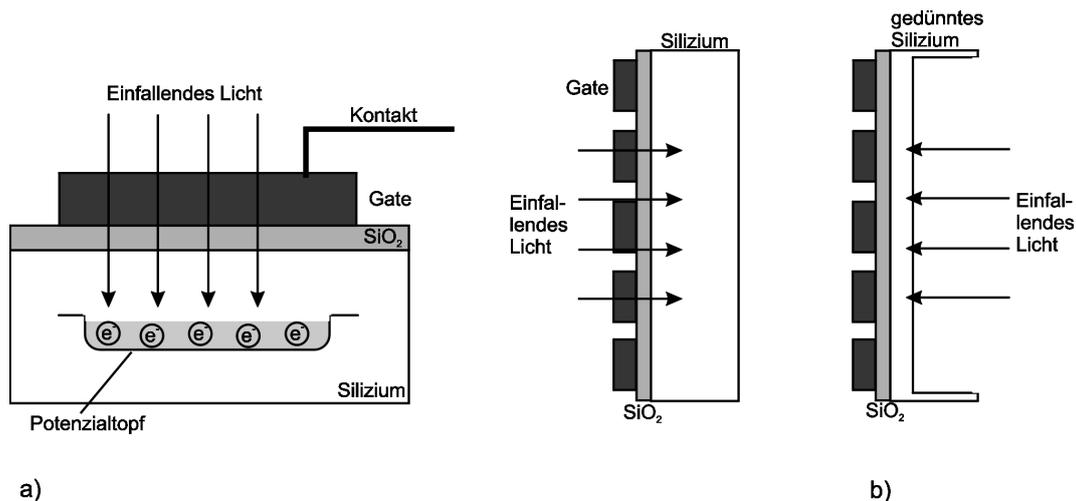


Abbildung 3.5.: Funktionsweise eines normalen a) und rückseitig gedünnten b) CCD-Chips. Nach [Wil94]

das Ausleserauschen erheblich mindert. Leider erhält man dadurch eine Auslesezeit von einigen Sekunden für ein Bild, weshalb man mit diesem Kamertyp keine Aufnahmen in Echtzeit machen kann. Für diesen Zweck wurden Photodioden benutzt.

3.3.2. Röntgendioden und Einzelphotonenzählung

Meistens ist es während eines Experimentes unerlässlich, eine regelmäßige Kontrolle in Echtzeit über die Intensität der entstehenden Röntgenstrahlung zu haben, um z.B. die Laserfokussierung zu optimieren. Da ein Detektor ohne Ortsauflösung für diesem Zweck völlig ausreichend ist, wurden speziell für den weichen Röntgenbereich geeignete Gallium-Arsenid-Phosphid-Photodioden verwendet [Gut86]. Zur Abschattung der sichtbaren Strahlung wird vor die Diode ein dünnes Metallfilter aus z.B. Aluminium oder Zirkonium gestellt, das Diodensignal wird auf einem Oszilloskop dargestellt. Dieses Signal ist zwar über die Strahlung aller Wellenlängen integriert, die durch das Filter transmittiert werden, kann aber trotzdem als guter Anhaltspunkt für die Stärke der Röntgenemission und dessen Optimierung dienen.

Man kann Photodioden auch zur Messung von Spektren im harten Röntgenbereich ($h\nu = 1\text{--}100\text{ keV}$) verwenden, da die Energie zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares bekannt ist (in Silizium z.B. 3,62 eV). Misst man in kurzen Abständen die Amplitude der an der Diode abfallenden Spannung, entspricht der Wert direkt der Energie eines Photons, wenn sichergestellt ist, dass während der Messzeit maximal ein Photon detektiert wurde. Entsprechend der Energie trägt man das Ereignis in ein Histogramm ein. Nach häufiger Wiederholung dieses Vorgangs erhält man mit dieser Einzelphotonenzählung ein Röntgenspektrum. Auch die Messung von absoluten Photonenzahlen ist auf diese Weise möglich, da jeder Count im Spektrum genau einem Photon entspricht. In dieser Arbeit wurde ein Detektor der Firma AMPTEK vom Typ XR100CR in Kombination mit einem Vielkanalanalysator (MCA-8000A) für die Messung von Spektren im Bereich $h\nu = 1\text{--}30\text{ keV}$ benutzt. Der Detektor besteht aus einem Si-Halbleiter und wird mittels eines Peltierelements gekühlt. Die Ener-

3. Aufbau der Diagnostik im weichen und harten Röntgenbereich

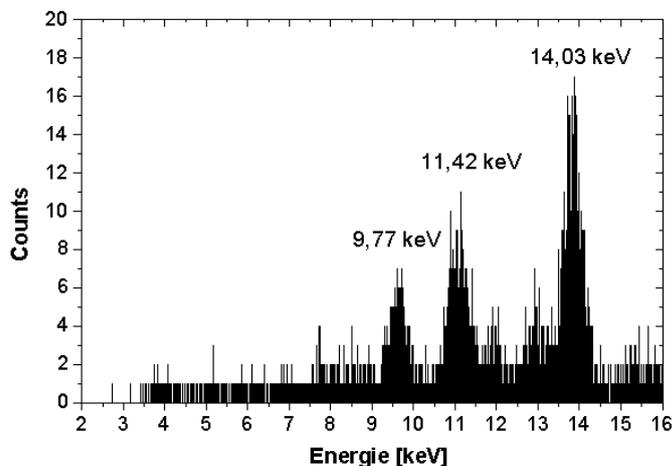


Abbildung 3.6.: Röntgenspektrum von ^{241}Am für die Energiekalibrierung der AMPTEK-Diode

Die Energieauflösung dieser Diode beträgt 300 eV, gemessen bei der Aufnahme eines Spektrums zur Energiekalibrierung mit einem radioaktiven Americium Präparat ^{241}Am (Abbildung 3.6).

3.3.3. Röntgen-Streak-Kamera

Eine Röntgen-Streak-Kamera („Schmierbildkamera“) kann man benutzen, um Informationen über den zeitlichen Verlauf der Plasmaemission zu gewinnen. Sie besteht aus einer Photokathode, einem Kondensator und einem Fluoreszenzschirm mit dahinter liegender CCD-Kamera. Die Funktionsweise dieser Anordnung ist wie folgt: Ein Röntgenpuls trifft auf die Kathode und löst dort einen Elektronenpuls aus, dessen Dichte dem zeitlichen Verlauf des Röntgenpulses entspricht. Während die Elektronen den Kondensator durchlaufen, wird dieser durch einen Hochspannungssägezahnimpuls sehr schnell aufgeladen. Dadurch erfahren die Elektronen je nach Durchflugszeitpunkt eine unterschiedlich starke Ablenkung durch das elektrische Feld. Man erhält auf dem Szintillatorschirm also eine räumliche Verteilung des Signals, ein „verschmiertes“ Bild. Diese Verteilung entspricht nun aber der zeitlichen Entwicklung des Röntgenpulses (Abbildung 3.7).

Die Zeitauflösung einer Streak-Kamera wird im wesentlichen bestimmt durch die Aufladungszeit des Kondensators und beträgt bei der verwendeten Kamera (Kentech 93014) ca. 1 ps. Um ein möglichst starkes Signal zu erhalten, kann die Röntgenstrahlung mittels eines toroidalen Hohlspiegels auf die Kathode, in diesem Fall Kaliumbromid auf einer Aluminiumfolie, fokussiert werden. Anstatt eines Fluoreszenzschirms wird eine Vielkanalplatte (engl. Multichannelplate MCP) verwendet, die eine weitere Verstärkung des Signals bewirkt. Darüber hinaus war es möglich, ein Gitter (2000 Linien/mm) hinter dem Hohlspiegel in den Strahlengang zu bringen [JTT⁺94] und so ein Bild zu erzeugen, das sowohl zeitliche als auch spektrale Informationen enthält.

3.4. Kalibrierung des Spalt-Gitter-Spektrographen im EUV-Bereich

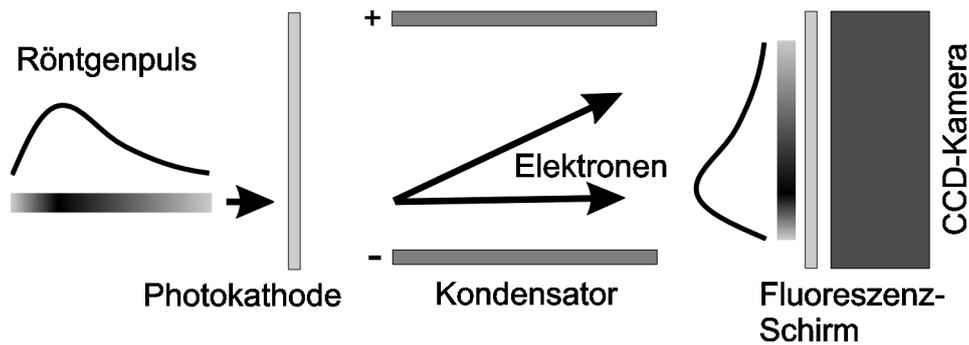


Abbildung 3.7.: Funktionsweise einer Streak-Kamera

3.4. Kalibrierung des Spalt-Gitter-Spektrographen im EUV-Bereich

Um absolute Photonenzahlen messen und Konversionseffizienzen bestimmen zu können, muss der Spalt-Gitter-Spektrograph kalibriert werden. Dazu bestimmt man den Beugungswirkungsgrad des Gitters (Gleichung (3.7)) und das Signal des CCD bei Belichtung mit einer definierten Anzahl von Photonen. In diesem Fall wurden aber nicht Gitter und Detektor einzeln, sondern das Gesamt-System bestehend aus Gitter und CCD-Kamera im Wellenlängenbereich von 10-15 nm geeicht. Wie anfangs erwähnt kann als zuverlässige Eichquelle bisher nur die Strahlung aus Elektronenspeicherringen gelten. Dazu nutzt man die Berechenbarkeit von Synchrotronstrahlung aus, d.h. man kann das detektierte Signal direkt mit einer auf den Spalt gefallenen Photonenzahl korrelieren. Man erhält einen wellenlängenabhängigen Faktor, mit dem man das CCD-Signal direkt in Photonen umrechnen kann.

Die Kalibrierung des Spektrographen im EUV-Bereich wurde an der Beamline der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt bei BESSY in Berlin durchgeführt. Die Beamline besitzt einen Undulator, der EUV-Strahlung erzeugen kann. Nach dem Undulator wurde die Strahlung über einen Umlenkspiegel direkt auf den Spektrographen geführt, um möglichst wenig optische Elemente im Strahlengang zu haben, die den Fehler bei der Kalibrierung erhöhen würden. Im normalen Betrieb des Speicherrings (multi-bunch) würde mit diesem Aufbau zu viel Strahlung auf den Spektrographen treffen, Gitter und CCD würden zerstört werden. Daher wurde die Eichmessung im single-bunch Modus mit sehr geringem Strahlstrom ($1 \mu\text{A}$) durchgeführt. Die Ergebnisse der Messung sind in Abbildung 3.8 dargestellt. Der systematische Fehler der Kalibrierung wurde zu $\leq 30\%$ abgeschätzt. Im Bereich des Wasserfensters (2,4 nm–4,4 nm) konnte am Speicherring keine Eichung durchgeführt werden, allerdings liegen hier für den Spektrographen Kalibrierungsdaten mit einer Genauigkeit von 50% vor, die aus Messungen an einer Laborquelle gewonnen wurden [Vog99].

Die Wahl eines zu eichenden Systems für die Messung von absoluten Photonenzahlen fiel deshalb auf den Spalt-Gitter-Spektrograph, da er gegenüber anderen möglichen Systemen einige Vorteile bezüglich der Kalibrierung bietet. So ist der Beugungswirkungsgrad eines Transmissionsgitters für einen Winkel um die 90° zwischen einfallender Strahlung und Gitteroberfläche keine Funktion dieses Einfallswinkels. Für ein in Reflektion arbeitendes Gitter und kleinen Einfallswinkeln gilt dies nicht mehr. Auch die Reflektivität eines Multilayerspiegels (siehe Abschnitt 4.1) ist vom Einfallswinkel der Strahlung relativ zur Spiegeloberfläche abhängig. Die Unsicherheit bei verschiedenen Messungen mit in Reflexion arbeitenden Sy-

3. Aufbau der Diagnostik im weichen und harten Röntgenbereich

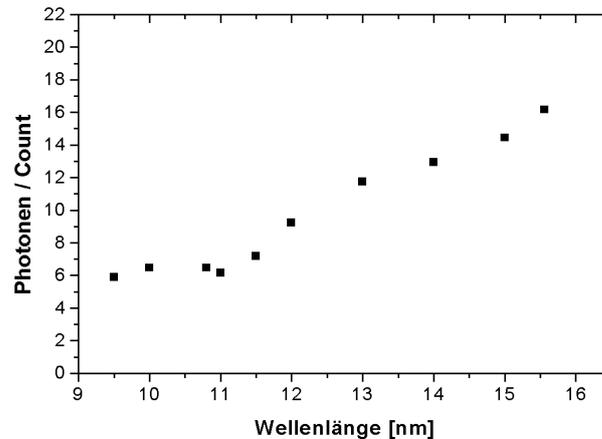


Abbildung 3.8.: Ergebnis der Kalibrierung des Spalt-Gitter-Spektrographen im Wellenlängenbereich 9,5–15,5 nm

stemen wächst also dadurch, dass nicht immer exakt dieselben Winkel zwischen Optik und einfallender Strahlung eingehalten werden können. Ein weiterer Punkt ist der Detektor. Wie in Abschnitt 3.3.1 bereits erwähnt, sind CCDs für Absolutmessungen besonders geeignet. So nimmt eine CCD direkt eine Integration der erzeugten Ladungsträger vor, was bei gepulsten Quellen wie einem Laserplasma notwendig ist, um ein ausreichendes Signal zu erhalten. Bei Dioden hingegen muss normalerweise der Strom im Kurzschlussbetrieb gemessen werden, bei gepulsten Quellen kann dies schwierig sein. Als Ausweg wird häufig über einen Widerstand der entstehende Spannungspuls gemessen und anschließend in einen Stromfluss umgerechnet, doch ist dieses Verfahren mit einem großen Messfehler verbunden. Statt dessen sollte über eine spezielle Schaltung ebenfalls eine Integration der erzeugten Ladungen vorgenommen werden, um eine korrekte Proportionalität zur auftreffenden Strahlung zu erhalten. Dies geschieht bei einem CCD automatisch.

Die Messung absoluter Photonenzahlen ist aufgrund der eben geschilderten Probleme je nach System mit einer mehr oder weniger großen Unsicherheit behaftet. Bei einem Vergleich der eigenen Messwerte mit Literaturangaben können daher Unterschiede auftreten, die allein auf die Messtechnik zurückzuführen sind.

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

Die Experimente in den zwei folgenden Kapiteln sind durch die mögliche Verwendung einer Laserplasmaquelle in der EUV-Lithographie motiviert. Ziel sind die Untersuchung der physikalischen Grundlagen zur Optimierung der EUV-Emission laserinduzierter Plasmen in Abhängigkeit von verschiedenen Lasersystemen und Targetkonzepten. Im folgenden Abschnitt folgt daher zunächst eine kurze Einleitung zur EUV-Lithographie, um das danach beschriebene Messprogramm zu motivieren.

4.1. Hintergrund: EUV-Lithographie

Die optische Lithographie ist die Standardmethode zur Herstellung von integrierten Halbleiterelementen wie z.B. Computerprozessoren. Dazu bildet man eine Maske der zu erzeugenden Schaltung mit Hilfe von Strahlung auf eine mit einem Photoresist beschichtete Halbleiterscheibe („Wafer“) ab. Nach der Entwicklung des Resists überträgt man die im Resist erzeugte Struktur in einem Ätzverfahren auf den Halbleiter. Die minimale Strukturgröße δ , die dabei erreicht werden kann, ist nach dem Rayleigh-Kriterium durch die Wellenlänge der benutzten Strahlung λ und die numerische Apertur NA bestimmt [BW80]:

$$\delta = 0,61 \frac{\lambda}{NA} = 0,61 \frac{\lambda}{n \cdot \sin \alpha} \quad (4.1)$$

Die numerische Apertur ist das Produkt aus Brechzahl n und dem Sinus des halben Öffnungswinkels α der Optik. Es werden derzeit UV-Eximer-Laser als Strahlungsquellen verwendet, wobei die kürzeste in Frage kommende Wellenlänge bei 157 nm liegt (F₂-Laser), womit Strukturbreiten von ca. 100 nm erzeugt werden können. Deshalb wird schon seit einiger Zeit nach geeigneten kürzerwelligen Strahlungsquellen im EUV-Bereich gesucht, die das Potenzial für Strukturen kleiner 50 nm bieten. Neben einem Synchrotron sind dies vor allem Plasmen, die mit Hilfe einer Gasentladung oder aber mit Lasern erzeugt werden können.

Bei der Auswahl eines geeigneten Spektralbereiches ist man durch die zur Verfügung stehenden Optiken eingeschränkt. Es können keine Transmissionsoptiken verwendet werden, da die Absorption von EUV-Strahlung in Materie hoch ist. Eine Alternative bieten spezielle Spiegeloptiken, sogenannte Multilayerspiegel [Sch00a]. Diese bestehen aus einer periodischen Schichtfolge von zwei unterschiedlichen Materialien. Da die Reflexion im senkrechten Einfall bei einer einzigen Spiegelschicht gering ist, benutzt man die Reflexion an Mehrschichten, die phasengerecht überlagert werden. Der am weitesten entwickelte Spiegeltyp ist dabei ein Multilayer aus Molybdän/Silizium. Spiegel dieser Art erreichen eine maximale Reflektivität von 70% im Bereich von 13 nm Wellenlänge in einer Bandbreite von 2,2% [BMH85, SSS⁺01].

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

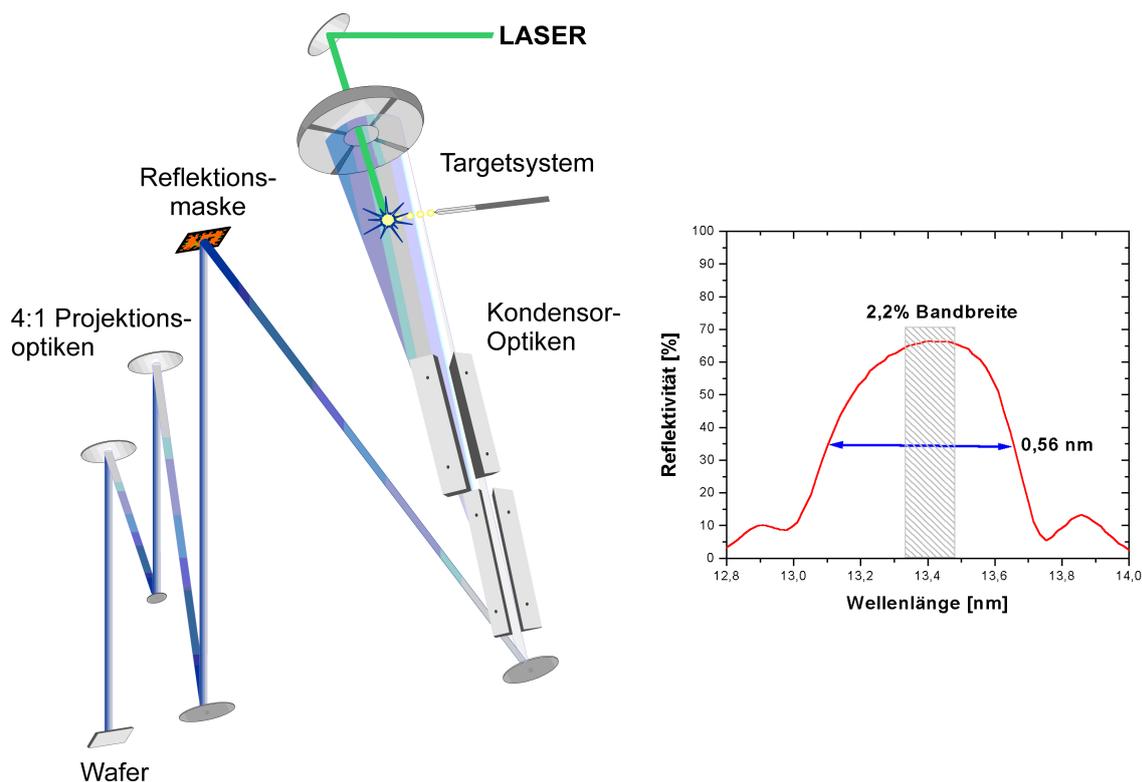


Abbildung 4.1.: Prinzip eines EUV-Wafersteppers mit Laserplasmaquelle, daneben dargestellt ist die Reflektivität eines Mo/Si-Multilayer Spiegels. Nach [Att00]

Man kann zum einen nun die Linienstrahlung aus einem Plasma nutzen und eine intensive Spektrallinie passend zum Reflektivitätsmaximum des Spiegels suchen. Da der Spiegel aber eine gewisse Bandbreite besitzt, kann prinzipiell auch ein Strahlungskontinuum verwendet werden, das über die Bandbreite integriert ebenfalls ein hohe Strahlungsleistung liefert. Voraussetzung für die EUV-Lithographie ist eine möglichst Debris-arme Quelle, was die Wahl der Targetmaterialien stark einschränkt. Die am häufigsten verwendeten Elemente sind daher Sauerstoff mit einer Spektrallinie bei 12,99 nm (O-VI, $1s^2 2p-1s^2 4d$) als Linienstrahler und Xenon als Kontinuumsstrahler. Die notwendige EUV-Emissionsleistung einer Lithographiequelle muss aufgrund der Vielzahl der in einer Lithographiemaschine („Waferstepper“, Abbildung 4.1) benötigten Multilayer im Bereich von 50–150W in einer relativen spektralen Bandbreite von 2,2% liegen [MBDK01].

Im Rahmen dieser Arbeit wurden laserinduzierte Plasmen untersucht, bei denen auch die Wahl des Targetsystems eine entscheidende Rolle spielt. Für Sauerstoff ist die Verwendung von Wasser in Form eines dünnen Flüssigkeitsstrahls (auch Jet genannt) ein Targetsystem mit geringem Debris [RMBH99, RTD⁺98], deshalb wurde es für die folgenden Untersuchungen ausgewählt.

4.2. Erzeugung von Flüssigkeitsstrahlen im Vakuum

Bringt man einen Flüssigkeitsstrahl ins Vakuum, so wird die Flüssigkeit aufgrund ihres Dampfdrucks verdampfen. Da der Dampf kontinuierlich abgepumpt wird, kann sich kein Gleichgewicht zwischen flüssiger und gasförmiger Phase bilden, die Verdampfung erfolgt permanent weiter. Die zum Verdampfungsprozess notwendige Energie kann aber nur aus dem Strahl selbst stammen, wodurch sich die Flüssigkeit des Jets sehr schnell abkühlt. Dies führt zu einer Reduzierung des Dampfdrucks und daher zu einer stark verminderten Abdampfung. Nur durch diesen Mechanismus ist es überhaupt möglich, stabile Flüssigkeitsstrahlen im Vakuum zu erzeugen [Wie99]. Um das für die Untersuchung von EUV-Strahlung notwendige Vakuum auch während des Betriebs des Jets durch Pumpen aufrecht erhalten zu können, müssen dünnen Strahlen verwendet werden, deren Durchmesser typischerweise im Bereich 10–50 μm liegen.

Wird eine Flüssigkeit durch eine runde Düsenöffnung ins Vakuum geschossen, bildet sich ein laminarer Strahl, der keinen äußeren Reibungskräften ausgesetzt ist. Um die Grenzfläche zum Vakuum zu minimieren, zerfällt dieser Strahl nach einer gewissen Strecke l in Tröpfchen, die nach der Rayleigh-Theorie für nicht-viskose Jets gegeben ist durch [Ray79]:

$$l = 3v \sqrt{\frac{\rho d^3}{\sigma}} \quad (4.2)$$

Es bezeichnen v die Strahlgeschwindigkeit, d den Düsendurchmesser, ρ die Dichte und σ die Oberflächenspannung. Eine Erweiterung der Theorie auf Flüssigkeiten mit einer Viskosität η liefert die Zerfallslänge als Produkt aus Jetgeschwindigkeit v und einer charakteristischen Zerfallszeit τ [Web31]

$$\tau = \left(\ln \left(\frac{d}{\delta} \right) \right) \cdot \left(\sqrt{\frac{\rho d^3}{\sigma}} + \frac{3\eta d}{\sigma} \right) \quad , \quad (4.3)$$

wobei δ die Amplitude einer auf den Jet aufgeprägten Anfangsstörung ist, verursacht z.B. durch eine nicht perfekt runde Düsenöffnung. Experimente liefern für die Konstante $\ln(d/\delta)$ einen Wert von ungefähr 12 [Hae31]. Nimmt man für die Berechnung der Geschwindigkeit des Jets näherungsweise die Bernoulli-Formel $v = \sqrt{2p/\rho}$ [GV95], ergibt sich eine Zerfallslänge $l = \tau \cdot v$ von:

$$l = 12 \left(\sqrt{\frac{\rho d^3}{\sigma}} + \frac{3\eta d}{\sigma} \right) \cdot \sqrt{\frac{2p}{\rho}} \quad (4.4)$$

Neben den Materialparametern wird die Zerfallslänge also durch den Düsendurchmesser d und den Düsendruck p beeinflusst. Dennoch ist es nicht möglich, durch eine Erhöhung des Drucks die Zerfallslänge beliebig zu vergrößern. Ab einem gewissen Druck entstehen Turbulenzen, die bereits innerhalb der Düse zu einer Zerstörung der laminaren Strömung führen, was zur Folge hat, dass nur noch ein Spray aus der Düse austritt. Eine empirisch gefundene Bedingung für dieses Spray-Limit lautet [Fau00]:

$$O_h = 630(R_e)^{-6/5} \quad (4.5)$$

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

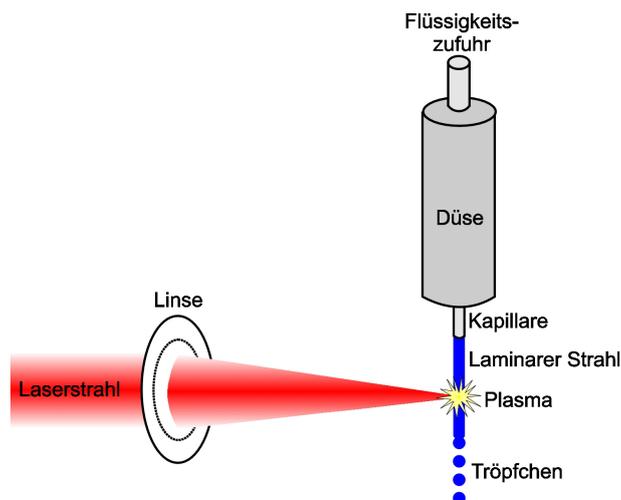


Abbildung 4.2.: Prinzip eines Flüssigkeitsstrahl-Targets für ein Laserplasma

Diese verknüpft die Reynoldszahl $R_e = vd\rho/\eta$ mit der Ohnesorge-Kennzahl $O_h = \eta/\sqrt{\rho\sigma d}$. Löst man Gleichung (4.2) nach v auf und setzt sie in die Reynoldszahl ein, erhält man aus Gleichung (4.5) für nicht-viskose Jets eine Abschätzung der maximal zu erwartenden Zerfallslänge:

$$l_{max} \leq 646 \cdot d \cdot (O_h)^{1/6} \quad (4.6)$$

Die maximalen Zerfallslängen sind in guter Übereinstimmung mit den experimentell gemessenen Werten und liegen im Bereich einiger Millimeter.

Die einfachste Möglichkeit, einen Flüssigkeitsstrahl als Target zu benutzen, besteht darin, den Laser auf den laminaren Teil des Jets zu fokussieren, wie es auch in den im folgenden beschriebenen Experimenten gemacht wurde (Abbildung 4.2). Man kann allerdings auch die Tröpfchen als Target benutzen [HRBM95, RH93]. Dazu prägt man dem Jet gezielt eine Störung auf, so dass sich eine stabile Zerfallsfrequenz ergibt. Diese kann mit der Phase der Repetitionsrate des Lasers synchronisiert werden, um mit jedem Laserpuls ein Tröpfchen exakt zu treffen.

4.3. Stabilitätsuntersuchungen an einem Flüssigkeits-Target bei hoher mittlerer Laserleistung

Es ist bekannt, dass die Konversionseffizienz von Laserlicht in EUV-Strahlung maximal im Bereich von wenigen Prozent liegen kann [LBJ⁺01]. Nimmt man beispielsweise eine Konversionseffizienz von 1% an und eine gewünschte EUV-Leistung von 100 W, bedeutet dies nach Gleichung (2.29) eine notwendige mittlere Laserleistung von 10 kW. Laser mit einer derart hohen mittleren Leistung im gepulsten Betrieb existieren im Moment aber noch nicht. Deshalb konnte bisher nicht untersucht werden, ob ein Flüssigkeitstarget unter diesen extremen Bedingungen überhaupt verwendet werden kann. Mit Hilfe eines speziellen, am MBI entwickelten Lasersystem ist es aber möglich, solche Bedingungen zu simulieren.

4.3. Stabilitätsuntersuchungen bei hoher mittlerer Laserleistung

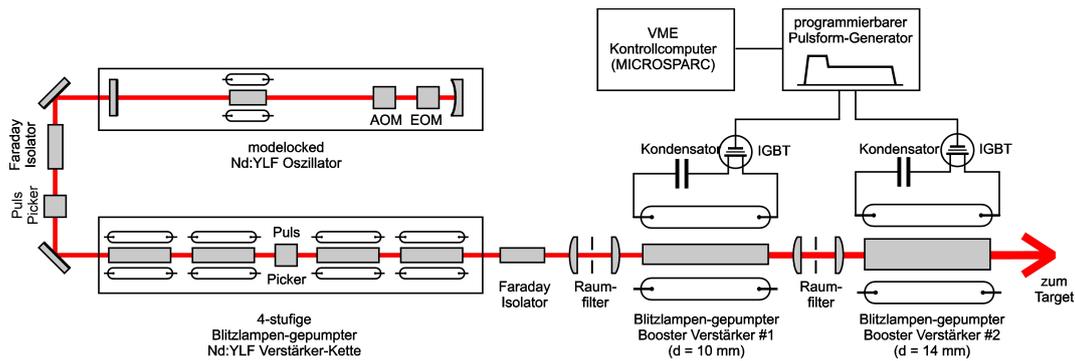


Abbildung 4.3.: Layout des Nd:YLF burst-mode Lasers [Wil]

4.3.1. Nd:YLF burst-mode Laser

Der Nd:YLF burst-mode Laser (Abbildung 4.3) emittiert bei $\lambda = 1047 \text{ nm}$ und wurde als Photokathodenlaser für die TESLA-Test-Facility entwickelt [WLMS98]. Aus diesem Grund besitzt er eine spezielle Pulsstruktur, er emittiert mit einer Repetitionsrate von maximal 10 Hz nicht einzelne intensive Pulse, sondern sogenannte Bursts. Das sind Pulzzüge bestehend aus aufeinander folgenden Einzelpulsen gleicher Intensität (Abbildung 4.6 oben). Der Laser besitzt einen Blitzlampen-gepumpten Oszillator und ursprünglich drei Verstärkerstufen, die ebenfalls mit Blitzlampen gepumpt werden. Um den Laser an die Anforderungen für die Erzeugung von Plasmen anzupassen, wurde er zunächst mit einer zusätzlichen Verstärkerstufe ausgestattet. In dieser Konfiguration können Bursts mit einer Abfolge von 2 Hz erzeugt werden. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wurde er zusätzlich mit zwei Booster-Verstärkern ausgestattet, um die Burstenergie weiter auf einen Wert von 4 J zu erhöhen. Letztere können allerdings nur mit 0,5 Hz Burstfolgefrequenz betrieben werden. Tabelle 4.1 zeigt die Laserparameter in den verschiedenen Ausbaustufen. Die Einzelpulsdauer beträgt im Normalbetrieb zwischen 25–30 ps. Sie wird durch die Verwendung von zwei Modulatoren im Oszillator, einem akusto-optischen (AOM) und einem elektro-optischen Modulator (EOM), erreicht. Lässt man den Laser ohne den ersten Modulator laufen, erhält man eine Pulsdauer von 300 ps, durch eine Dämpfung des zweiten ist eine maximale Pulsdauer von 3000 ps = 3 ns einstellbar. Diese Möglichkeiten der Einstellung der Pulsdauer stellen eine im Hinblick auf die Untersuchungen zur EUV-Emission eines Plasmas wichtige Eigenschaft des Lasers dar.

Eine weitere Besonderheit des Lasers ist die mögliche Variation der Anzahl der Einzelpulse im Burst. Diese kann prinzipiell zwischen 25–800 Pulsen verändert werden, die möglichen

Tabelle 4.1.: Laserparameter für die 1. Ausbaustufe mit 4 Verstärkern und für die 2. Stufe mit 6 Verstärkern, P_{avg} steht für die mittlere Leistung

	Energie/Burst	P_{avg} /Burst	max. Energie/Puls	P_{avg} (bei Rep.rate)
1. Stufe	0,48 J	0,6 kW	4,8 mJ	0,96 W (2 Hz)
2. Stufe	4 J	5 kW	40 mJ	2 W (0,5 Hz)

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

Einstellungen unterscheiden sich dabei jeweils um einen Faktor zwei. Betrachtet man nun nur die Zeitskala des Bursts, der $800 \mu\text{s}$ lang ist, bedeutet dies Repetitionsraten von 31,25–1000 kHz. Der Abstand zwischen zwei Einzelpulsen beträgt somit minimal $1 \mu\text{s}$, lang genug, um eine Wechselwirkung eines Pulses mit dem Plasma des vorherigen Pulses auszuschließen. Auf eine Zeit von $800 \mu\text{s}$ bezogen bedeutet eine Energie von 4 J eine mittlere Laserleistung pro Burst von 5 kW. Für eine Messdauer, die kleiner als die Burstdauer ist, liefert der Laser eine wirkliche Laserleistung von 5 kW. Somit bietet der Laser die einzigartige Möglichkeit, den Betrieb eines Lasers mit einer kontinuierlichen Leistung von 5 kW zu simulieren.

Für einen Flüssigkeitsjet ist die Zeitdauer von $800 \mu\text{s}$ im Hinblick auf Stabilitätsuntersuchungen von Relevanz. Trifft ein fokussierter Laserstrahl auf den Jet, können sich Schockwellen bilden, die in Richtung der Düsenöffnung laufen und die laminare Strömung eventuell zerstören. Die Schallgeschwindigkeit in Wasser beträgt 1533 m/s bei 20°C , damit laufen die Schockwellen in $1 \mu\text{s}$ eine Strecke von 1,5 mm. Somit erreichen sie schon nach 2–3 Laserpulsen die Düsenöffnung. Es kann also der Einfluss eines Lasers mit hoher Repetitionsrate und hoher mittlerer Leistung auf ein Jettarget im Rahmen von physikalisch relevanten Zeiten untersucht werden.

4.3.2. Versuchsaufbau und Durchführung

Der komplette Versuchsaufbau, der für alle in diesem Kapitel beschriebenen Untersuchungen verwendet wurde, ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Für die Erzeugung des Wasserjets wurde ein kommerziell erhältliches Glaskapillar-Düsensystem (Siemens Elema) mit einem Öffnungsdurchmesser von $10 \mu\text{m}$ verwendet. Der Druck, der mit Hilfe einer Stickstoffflasche auf die Düse gegeben wurde, betrug 35 bar. Damit ist die Geschwindigkeit des Jets ungefähr 84 m/s , womit bei einer maximalen Laserrepetitionsrate von 1000 kHz eine Strecke von $84 \mu\text{m}$ zwischen zwei Pulsen zurückgelegt wird. Dies ist weit genug, so dass jeder Puls eine „frische“ Stelle trifft. Der Jet wurde in einer Targetkammer unter Vakuumbedingungen betrieben, eine 1600 l/s Turbodrumpumpe sorgte für die Aufrechterhaltung des Vakuums. In 5 cm Entfernung von der Düsenöffnung passierte der Strahl ein Loch mit einem Durchmesser von 3 mm und traf in einen Bereich mit einem höheren Druck als in der Targetkammer. Diese Anordnung wird als differentielle Pumpstufe bezeichnet und bestand aus einem 1,5 m langen Rohr, in dem eine Wälzkolbenpumpe mit einem Saugvermögen von $500 \text{ m}^3/\text{h}$ für ein komplettes Abpumpen der Flüssigkeit sorgte. Während des Betriebs des Jets konnte auf diese Weise ein Druck von $< 10^{-3} \text{ mbar}$ in der Targetkammer erreicht werden.

Um die Position des Jets und des Plasma im Raum zu überwachen, war die Kammer mit zwei Beobachtungssystemen ausgestattet. Eine achromatische Linse bildete den Jet vergrößert auf eine CCD-Kamera ab, deren Signal auf einem Monitor dargestellt wurde. Eine Kombination aus verschiedenen Glasfiltern schützte die Kamera vor einer Überbelichtung durch Laserstrahlung und sichtbare Strahlung aus dem Plasma. Aufgrund der senkrechten Anordnung der zwei Beobachtungssysteme zueinander konnte die Jetposition mit einer Genauigkeit von $5 \mu\text{m}$ in allen drei Raumrichtungen beobachtet und falls nötig korrigiert werden.

Der Laser wurde mit einem hochaperturigen Lasermonochromat ($f = 6 \text{ cm}$) auf den laminaren Teil des Jets fokussiert. Die Länge des laminaren Teils betrug maximal 5 mm, was etwas länger ist als der nach Gleichung (4.6) berechnete Wert von 1,3 mm. Die gemessene Größe des Laserfokus betrug $10 \mu\text{m}$ (FWHM). Damit war sichergestellt, dass die Fokusgröße

4.3. Stabilitätsuntersuchungen bei hoher mittlerer Laserleistung

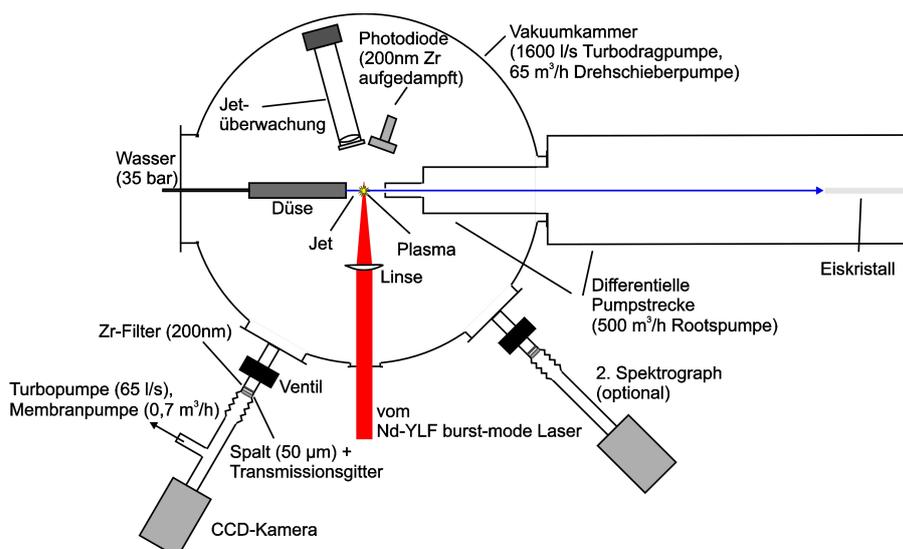


Abbildung 4.4.: Schematischer Versuchsaufbau für die in diesem Kapitel beschriebenen Experimente

und der Jetdurchmesser denselben Wert besitzen. Um den Fokus genau auf dem Jet zu positionieren, war die Linse auf einem 3-achsigen Translationstisch montiert.

Die optimale Position des Fokus auf dem Jet wurde mit einer GaAsP-Photodiode überprüft, die durch ein 200 nm Zr-Filter vor sichtbarer Strahlung geschützt war. Ein Oszilloskop stellte das Signal der Diode dar. Eine Dejustage der horizontalen Fokusposition um wenige μm führte zu einem Einbruch des mit der Diode registrierten EUV-Signals. Die Signale auf der Diode konnten zudem für die Überprüfung der Jetstabilität verwendet werden.

Für die Messung der absoluten EUV-Emission kam der Spalt-Gitter-Spektrograph zum Einsatz, geschützt vor sichtbarer Strahlung ebenfalls durch ein 200 nm Zr-Filter. Der Spektrograph wurde zur Laserachse unter einem Winkel von 30° positioniert. Auf eine hohe spektrale Auflösung wurde kein Wert gelegt, sondern auf einen auf dem Chip sichtbaren Spektralbereich von 11–15 nm. Die Berechnung der Konversionseffizienz aus den Spektren erfolgte unter der Annahme einer in den gesamten Raumwinkel isotropen EUV-Emission.

Für die Untersuchung der Stabilität des Flüssigkeitsstrahls wurden zwei Messreihen durchgeführt, einmal mit der ersten Ausbaustufe des Laser und 0,6 kW/Burst und später mit der zweiten Stufe und 5 kW/Burst. Bei jeder der drei möglichen Pulsdauern wurde dabei die Zahl der Pulse pro Burst zwischen 100–800 Pulsen variiert, also Repetitionsraten von 125–1000 kHz getestet.

4.3.3. Ergebnisse und Diskussion

In Abbildung 4.5 sind typische Spektren für die drei Pulsdauern bei einer Repetitionsrate von 125 kHz und einer mittleren Leistung von 0,6 kW/Burst gezeigt. Drei Linien von fünffach-ionisiertem Sauerstoff (O-VI, Lithium-ähnlich) dominieren das Spektrum über einem geringen Untergrund (die Wellenlängenzuordnung der Linien erfolgte nach [Kel]). Die Breite der Spektrallinien ist dabei durch die Auflösung des Spektrographen bestimmt. In der Mitte der

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

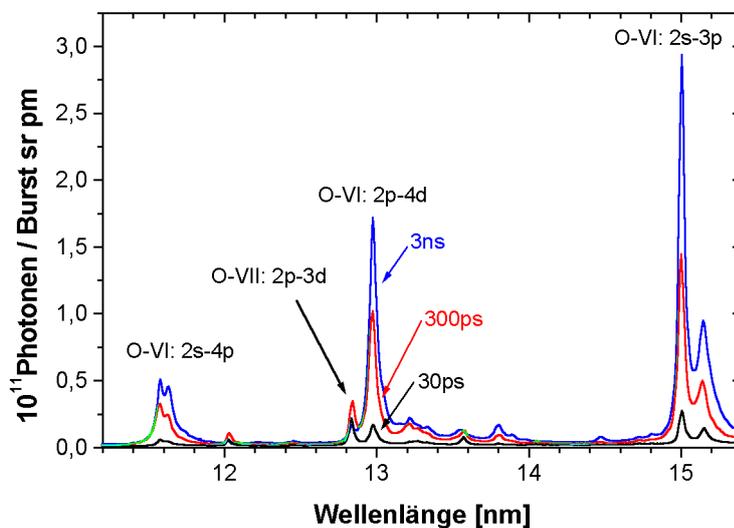


Abbildung 4.5.: Typische Spektren für 3 ns (blau), 300 ps (rot) und 30 ps (schwarz) Pulsdauer und einer mittleren Laserleistung von 0,6 kW im Burst

Spektren befindet sich die für die Lithographie relevante Linie bei 12,99 nm Wellenlänge, es handelt sich um einen 2p-4d Übergang. Die Linie bei 15 nm gehört zu einem 2s-3p Übergang, die bei 11,6 nm zu 2s-4p. Auffällig ist, dass die relative Intensität der Spektrallinien dieser einen Ionensorte für alle Pulsdauer (d.h. Intensitäten) gleich bleibt. Dies liegt an den festen Relation der Übergangswahrscheinlichkeiten der einzelnen Niveaus zueinander. Es ist daher nicht möglich, die relativen Intensitäten der Spektrallinien durch eine Variation der Laserparameter zu beeinflussen.

Allerdings ist deutlich zu sehen, dass bei 30 ps Pulsdauer eine Linie bei 12,85 nm, die zu einer höheren Ionisationsstufe gehört (O-VII, Helium-ähnlich, 2p-3d Übergang), nahezu die gleiche Intensität erreicht wie die 12,99 nm Linie. Bei den anderen Pulsdauern dagegen ist die Intensität bei 12,85 nm wesentlich schwächer als bei 12,99 nm. Es ist also möglich, die relativen Intensitäten zweier zu verschiedenen Ionensorten gehörenden Spektrallinien durch eine Variation der Laserintensität zu verändern. Da die Laserintensität direkt einen Einfluss auf die Elektronentemperatur im Plasma hat (Gleichung (2.27)), kann man über eine Intensitätsvariation die relative Anzahldichte einer einzelnen Ionensorten beeinflussen, was sich in den Intensitäten der Spektrallinien, die zu diesen Ionen gehören, widerspiegelt. Eine genauere Erklärung dieser einfachen Modellvorstellung erfolgt im Rahmen der Diskussion der Konversionseffizienzen in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer (Abschnitt 4.4).

Die Puls-zu-Puls Stabilität, gemessen mit der Photodiode, ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Zum Vergleich ist auch die Pulsstabilität des Lasersignals gezeigt. Die Fluktuationen des EUV-Signals betragen 10% (2σ) bei 0,6 kW und 20% bei 5 kW Leistung im Burst, jeweils gemessen bei einer Repetitionsrate von 250 kHz. Für höhere Folgefrequenzen (> 500 kHz) werden sie allerdings deutlich größer ($2\sigma > 50\%$). Eine Erklärung für dieses Verhalten folgt bei der Diskussion der laminaren Stabilität am Ende dieses Abschnitts.

4.3. Stabilitätsuntersuchungen bei hoher mittlerer Laserleistung

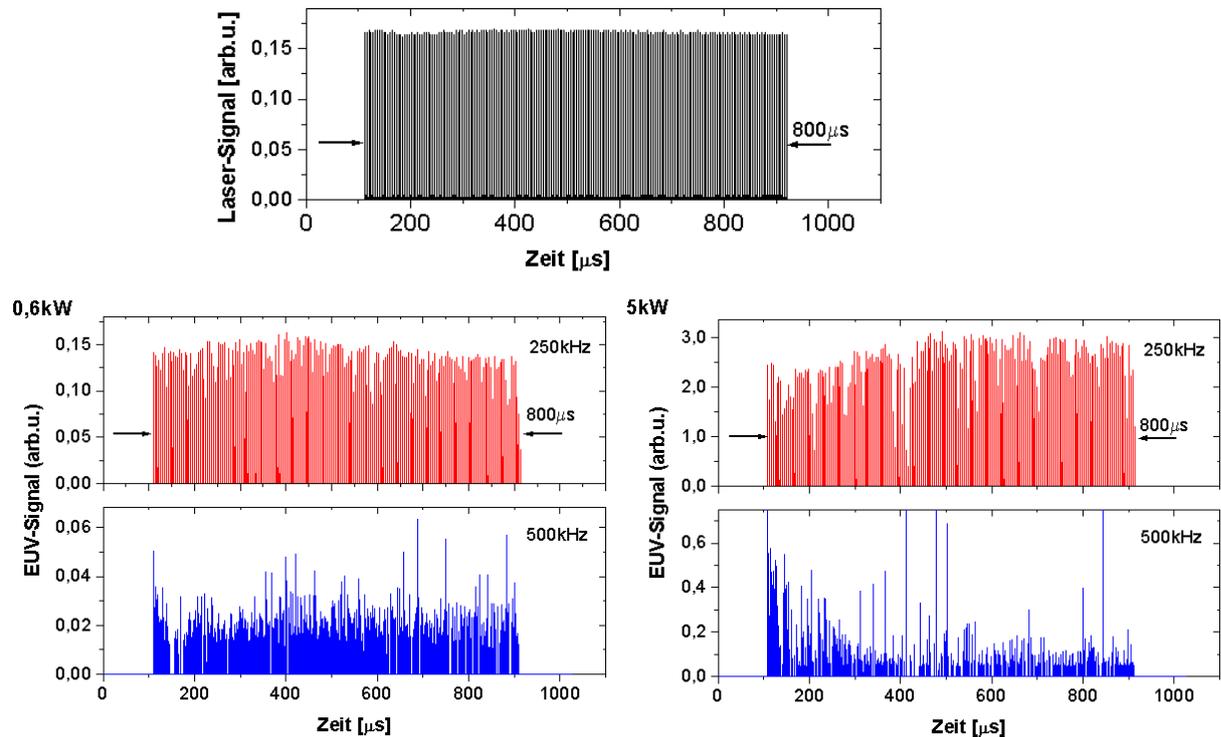


Abbildung 4.6.: Mit Photodioden gemessene Puls-zu-Puls Stabilität des Lasers (oben) und des EUV-Signals bei 0,6 kW (links) bzw. 5 kW (rechts) Leistung im Burst (Laserpulsdauer 30 ps). Gezeigt sind die Signale für 250 kHz (Mitte) und 500 kHz (unten) Repetitionsrate.

Zur Untersuchung der mittleren Stabilität des EUV-Signals werden die gemessenen Spektren herangezogen und die Konversionseffizienzen bestimmt. Die Messzeit für ein Spektrum lag typischerweise bei 60 s, so dass die über mehrere Bursts integrierte Emission gemessen wurde. Als Auswertebereich im Spektrum diente die Mo/Si-Multilayer Bandbreite von 2,2%, in der die beiden Sauerstofflinien bei 12,99 nm und 12,85 nm Wellenlänge liegen. Als erstes sollen die Daten für 0,6 kW mittlere Leistung im Burst diskutiert werden. Bei einer Pulsdauer von 30 ps ist die Effizienz nahezu konstant und erreicht einen Maximalwert von 0,02% bei 500 kHz Repetitionsrate (Abbildung 4.7). Bei 300 ps Pulsdauer dagegen ist ein Maximum von 0,08% bei der niedrigsten Pulsfolge-Frequenz von 125 kHz zu verzeichnen, bei höheren Raten fällt die Effizienz ab. Bei 3 ns Pulsdauer liegt das Maximum von 0,12% an der gleichen Stelle wie bei der Messung mit 300 ps, allerdings ist der Abfall der Effizienz zu höheren Repetitionsraten hin deutlich stärker.

Bei einer mittleren Leistung von 5 kW im Burst ist die Situation anders. Für jede Pulsdauer wird die höchste Effizienz nun bei der geringsten Repetitionsrate erreicht (250 kHz) und fällt zu höheren Raten hin ab. Der stärkste Abfall ist nun bei 30 ps Pulsdauer zu sehen, bei 300 ps bleibt er ungefähr gleich, während er bei 3 ns deutlich geringer ist als bei 0,6 kW. Außerdem fällt auf, dass bei 5 kW die Effizienzen insgesamt geringer sind.

Um das detaillierte Verhalten der Konversionseffizienz im Hinblick auf die Stabilität des Jettargets zu interpretieren, betrachtet man die Stabilität zweckmäßigerweise unter zwei Ge-

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

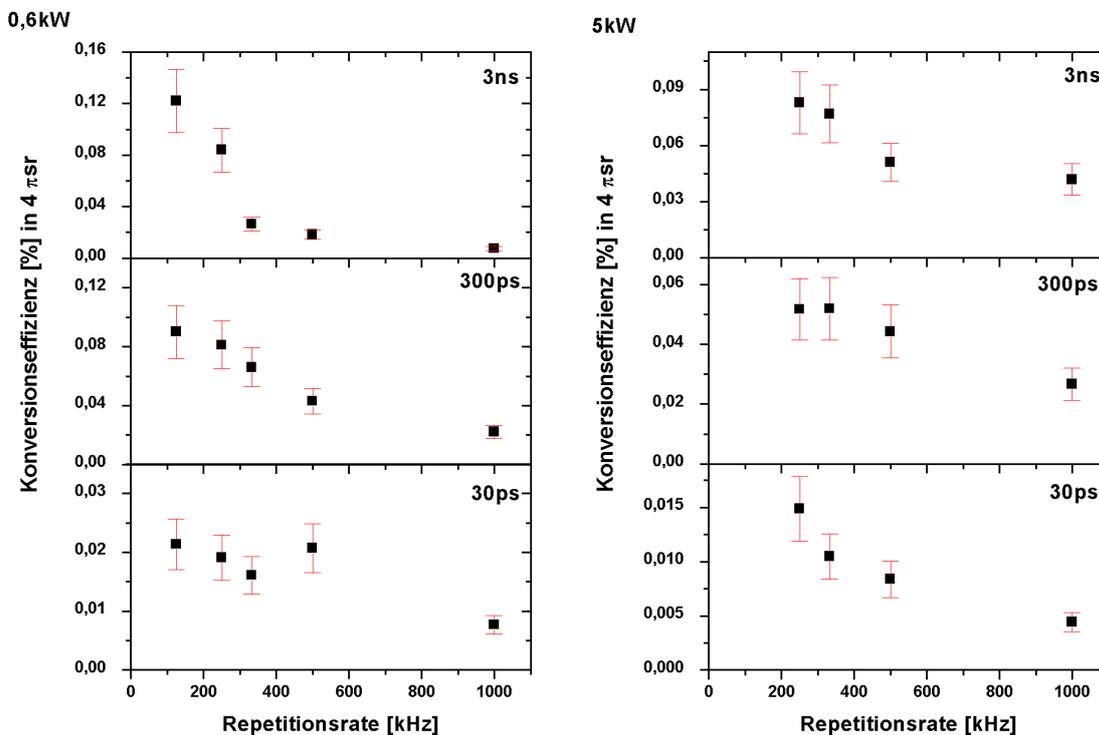


Abbildung 4.7.: Konversionseffizienzen (13 nm Wellenlänge) bei 0,6 kW (links) und 5 kW (rechts) Leistung im Burst in Abhängigkeit der Repetitionsrate für drei Pulsdauern

sichtspunkten: Auf der einen Seite die Ortsstabilität und auf der anderen Seite die laminare Stabilität des Targets.

Die Messungen mit den zwei Beobachtungssystemen zeigen, dass der Jet räumlich gesehen auch bei höchster mittlerer Leistung und Folgefrequenz stabil bleibt und seine Position nicht verändert. Im Rahmen der Auflösung dieser Systeme ($5 \mu\text{m}$) konnte innerhalb eines Zeitrahmens von 30 min keine Variation der Jetposition unter Laserbeschuss festgestellt werden. Zum anderen kann eine hohe Ortsstabilität aus der EUV-Emission abgelesen werden. Spektren, die zu verschiedenen Zeiten innerhalb von 30 min aufgenommen wurden, lieferten ein konstantes EUV-Signal und damit konstante Konversionseffizienzen. Bei anderen, ebenfalls mit dem burst-mode Laser untersuchten Düsensystemen [Vog99] dagegen änderte der Jet schon nach wenigen Laserpulsen seine Position im Raum, so dass der Laserfokus nicht mehr mit dem Jet zusammentraf und kein Plasma mehr erzeugt wurde. Dies zeigt hin, dass das Düsendesign für die Stabilität des Flüssigkeitsstrahls eine entscheidende Rolle spielt. Düsen aus Glaskapillaren wie die in dieser Arbeit benutzten scheinen besonders geeignet zu sein.

Allerdings stellt die laminare Stabilität des Jets bei hohen Repetitionsraten $>500 \text{ kHz}$ ein Problem dar. Der Laser trifft anscheinend nicht mehr auf ein definiert neues Stück Target. Dies kann man zum einen an der mit der Diode beobachteten starken Puls-zu-Puls Schwankungen feststellen, zum anderen am Abfall der Effizienz hin zu hohen Repetitionsraten. Die

4.4. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer

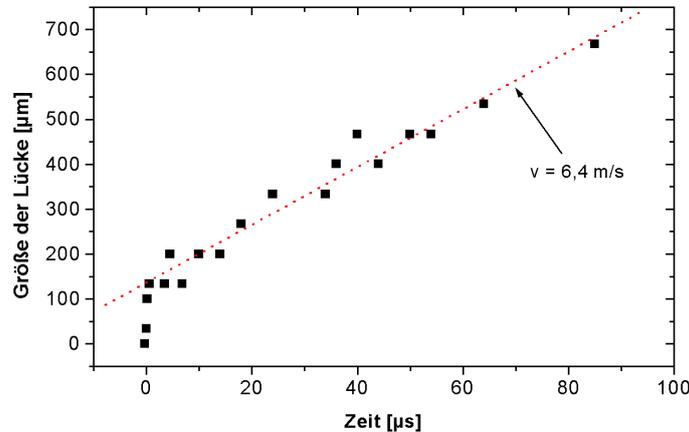


Abbildung 4.8.: Größe der Lücke, die im Jet nach dem Laserbeschuss entsteht, zu verschiedenen Zeiten. Ein linearer Fit an die Messwerte für Zeiten $> 1 \mu\text{s}$ ergibt eine Wachstumsgeschwindigkeit der Lücke von $6,4 \text{ m/s}$. Grafik von A. Thoß [Tho02]

Ursache hierfür können weiterführende Messungen erklären, die ebenfalls am MBI von Dipl. Phys. A. Thoß an Wasserjets durchgeführt wurden [Tho02]. Dabei wurde der Jet (Durchmesser $20 \mu\text{m}$) an der Stelle, an der sich der Laserfokus befand, zu verschiedenen Zeiten kurz nach dem Ende des Laserpulses fotografiert. Es zeigte sich, dass nach kurzer Zeit (200 ns) eine Lücke im Jet entsteht, dessen Größe innerhalb einer μs auf $130 \mu\text{m}$ anwächst. Zu noch späteren Zeiten dehnt sich diese Lücke noch weiter aus, allerdings mit einer deutlich geringeren Geschwindigkeit von $< 10 \text{ m/s}$ (siehe Abbildung 4.8). Dieses Resultat kann die großen Puls-zu-Puls Schwankungen bei hohen Repetitionsraten erklären. Der zeitliche Abstand zwischen zwei Einzelpulsen im Burst beträgt bei 1000 kHz genau $1 \mu\text{s}$, in dieser Zeit ist aber eine Lücke im Jet entstanden. Nimmt man eine Jetgeschwindigkeit von ca. 80 m/s an, bedeutet dies, dass sich die Lücke zwischen zwei einzelnen Pulsen noch nicht so weit von der Stelle des Laserfokus entfernt hat, dass dieser auf ein definiert neues Stück eines laminaren Jets trifft. Dies resultiert in der gemessenen geringen Puls-zu-Puls Stabilität. Auch bei einem Pulsabstand von $2 \mu\text{s}$ (500 kHz) ist dies noch der Fall, erst ab $4 \mu\text{s}$ Abstand (250 kHz) wird die Stabilität deutlich besser.

Die geringe Puls-zu-Puls Stabilität sorgt ebenfalls für einen Abfall der mittleren EUV-Emission und damit der Effizienz bei hohen Repetitionsraten. Eine weitere Ursache für diesen Effizienzabfall ist aber auch in der geringeren Intensität der Laserstrahlung bei hohen im Vergleich zu niedrigen Folgefrequenzen zu finden, wie die Messungen des folgenden Abschnitts zeigen.

4.4. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer

Neben Experimenten zur Targetstabilität sind für eine Optimierung der EUV-Emission auch Untersuchungen zur Maximierung der Konversionseffizienz nötig. Wie in Kapitel 2 erläutert,

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

sollte die Effizienz sowohl von der Laserintensität als auch von der Pulsdauer abhängig sein. Bisher sind für Wasserstrahl-targets keine systematischen Messungen durchgeführt worden, die sowohl Pulsdauer als auch Intensität über einen weiten Bereich variieren. Dabei sollte für eine Vergleichbarkeit der Resultate möglichst dasselbe Lasersystem verwendet werden. Nach Gleichung (2.25) ist für 13 nm Strahlung eine Intensität auf dem Target von mindestens 10^{11} W/cm² notwendig. Solche Intensitäten können mit Lasern erreicht werden, die eine Pulsdauer im ps- bzw. ns-Bereich besitzen, daher bietet der Nd:YLF burst-mode Laser für diese Untersuchungen geeignete Bedingungen.

4.4.1. Versuchsaufbau und Durchführung

Der Versuchsaufbau ist analog zu dem im Abschnitt 4.3.2 beschriebenen. Um eine möglichst hohe Puls-zu-Puls Stabilität zu gewährleisten, wurde eine Repetitionsrate von 250 kHz gewählt. Für jede Pulsdauer erfolgte die Aufnahme von Spektren unter einer Variation der Laserenergie. Auf diese Weise konnte ein Intensitätsbereich von ungefähr 10^{11} – 10^{15} W/cm² überstrichen werden.

4.4.2. Ergebnisse und Diskussion

Der Verlauf der Konversionseffizienz in Abhängigkeit der Laserintensität ist in Abbildung 4.9 gezeigt. Zusätzlich sind in Tabelle 4.2 die maximalen Werte für die drei Pulsdauern zusammengefasst. Die höchste Effizienz beträgt 0,12% bei einer Pulsdauer von 3 ns und einer Intensität von $1,3 \cdot 10^{12}$ W/cm². Bei niedrigeren Intensitäten fällt die Effizienz deutlich ab, bei höheren nur leicht. Das qualitative Verhalten ist bei 300 ps Pulsdauer ähnlich, allerdings ist die optimale Konversionseffizienz und der Abfall, der eine zu niedrige Intensität anzeigt, bei einer höheren Intensität zu finden. Zusätzlich ist der Maximalwert mit 0,09% bei $8,5 \cdot 10^{12}$ W/cm² etwas geringer als bei 3 ns. Für 30 ps Pulsdauer ergibt sich eine völlig an-

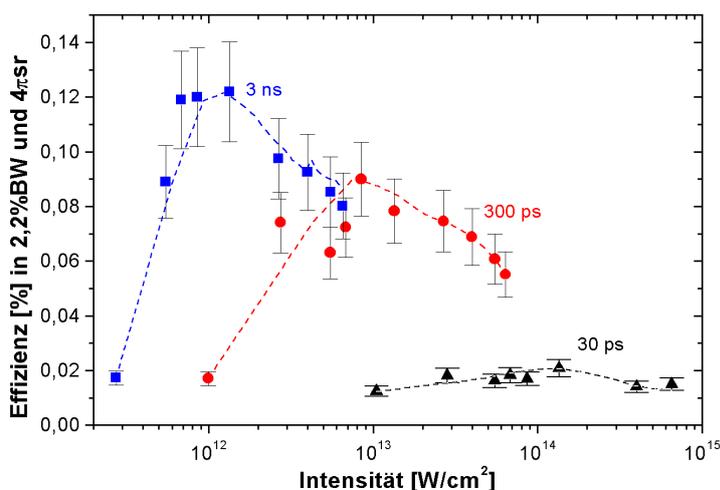


Abbildung 4.9.: Konversionseffizienz bei 13 nm Wellenlänge als Funktion der Laserintensität bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate)

4.4. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer

Tabelle 4.2.: Maximal erreichte Konversionseffizienzen bei 13 nm Wellenlänge (in den gesamten Raumwinkel $4\pi\text{sr}$) für verschiedene Laserparameter.

Pulsdauer [ps]	Intensität [W/cm^2]	Energie/Puls [mJ]	Effizienz [%]
30	$1,5 \cdot 10^{14}$	3,8	$0,021 \pm 0,004$
300	$8,5 \cdot 10^{12}$	2,6	$0,09 \pm 0,02$
3000	$1,3 \cdot 10^{12}$	4,0	$0,12 \pm 0,02$

dere Situation. Die Konversionseffizienz ist ungefähr einen Faktor 10 geringer als bei einer Pulsdauer von 3 ns. Auch sind bei gleichen Intensitäten die Effizienzwerte für 300 ps deutlich höher als für 30 ps, darüber hinaus zeigen sie nur eine geringe Abhängigkeit von der Intensität.

Die Tatsache, dass bei gleicher Intensität höhere Effizienzen mit längeren Pulsen erreicht werden, deutet auf eine Stoßabsorption als Hauptmechanismus für die Plasmaheizung hin (vgl. Abschnitt 2.4). Erst bei Pulsdauern im ns-Bereich kann sich ein flacher Elektronendichtegradient im Plasma bilden, der die Voraussetzung für einen optimalen Energieübertrag von Laserstrahlung auf das Plasma ist. Dies spiegelt sich direkt in der Konversionseffizienz wider.

Um die gemessene Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Laserintensität in einem einfachen physikalischen Modell zu verstehen, muss man sich zunächst vergegenwärtigen, dass die berechnete Effizienz ein direktes Maß für die Intensität der Spektrallinie bei 12,99 nm Wellenlänge ist. Damit wird die Effizienz nur durch das Emissionsverhalten einer bestimmten Ionensorte (O-VI) beeinflusst. Man kann nun das Plasma als ein System betrachten, welches sich im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht befindet (LTG). Dies ist eine Erweiterung des VTG Modells, um den Gegebenheiten im Plasma besser zu entsprechen (vgl. Abschnitt 2.5.1). Ist die Elektronendichte im Plasma genügend groß und die Wechselwirkung der Teilchen im wesentlichen durch Stöße und nicht durch Strahlungsprozesse bestimmt, was in dem untersuchten Plasma näherungsweise angenommen werden kann, kann man ein kleines Volumenelement betrachten, in dem sich Elektronen und Ionen im thermodynamischen Gleichgewicht befinden. Daher der Name LTG. Die relativen Ionenpopulationsdichten werden im LTG durch die Saha-Eggert-Gleichung beschrieben [SW92]:

$$\frac{n_e \cdot n_{i+1}}{n_i} = \frac{g_{i+1}}{g_i} \cdot \left(\frac{2m_e^3}{h^3} \cdot \left(\frac{2\pi k_B T_e}{m_e} \right)^{3/2} \right) \cdot \exp(-E_i/k_B T_e) \quad (4.7)$$

Es bezeichnen n_e , m_e die Elektronendichte bzw. -Masse, n_i die Anzahldichte der Ionen mit Ionisierungsstufe i , g_i ist das statistische Gewicht der Stufe i und E_i dessen Ionisierungsenergie, h ist das Plancksche Wirkungsquantum. Kombiniert man alle Saha-Eggert-Gleichungen für die Ionensorten i mit den Gleichungen für die Erhaltung der Teilchenzahlen

$$n_{tot}^i = \sum_{i=0}^Z n_i \quad (4.8)$$

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

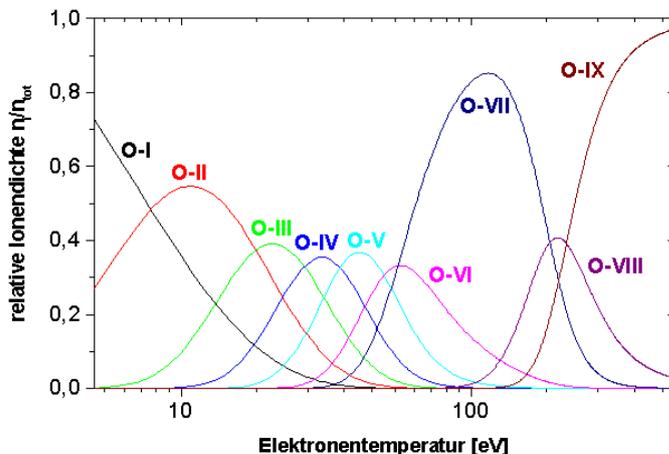


Abbildung 4.10.: Stationäre Ionenpopulationsverteilung von Sauerstoff im LTG bei einer Atomdichte von $4,4 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$. Numerik zur Berechnung von Dr. J. Ehlert, MBI

und

$$n_e = \sum_{i=0}^Z i \cdot n_i \quad , \quad (4.9)$$

erhält man ein vollständiges Gleichungssystem zur Bestimmung von n_e und den Ionendichten n_i in den verschiedenen Sorten in Abhängigkeit der Elektronentemperatur T_e .

In Abbildung 4.10 ist die Verteilung der Ionendichten für Sauerstoff und die Annahme eines lokalen thermodynamischen Gleichgewichts (LTG) bei einer Atomdichte von $n_{tot}^i = 4,4 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ (Festkörperdichte) gezeigt. Man erkennt, dass es für jede Ionensorte ein bestimmtes Temperaturfenster gibt, in der die Anzahldichte maximal wird.

Im Rahmen des LTG Modells wird die Konversionseffizienz in der 12,99 nm Spektrallinie maximal, wenn die Bedingungen im Plasma für eine maximale Dichte der O-VI Ionen sorgen. Dies passiert bei einer Elektronentemperatur um die 60 eV (vgl. Abbildung 4.10). Die Elektronentemperatur ist aber direkt mit der Intensität gekoppelt (Gleichung (2.27)). Je höher die Intensität, desto höher auch die Plasmatemperatur, die wiederum einen entscheidenden Einfluss auf die relative Ionenpopulationsverteilung hat. Vor diesem Hintergrund kann man den Abfall der Konversionseffizienz bei höheren Intensitäten erklären. Die Anzahl der O-VI Ionen nimmt ab zugunsten von O-VII und O-VIII Ionen, da die Elektronentemperatur im Plasma ansteigt. Dies ist in den Spektren ansatzweise daran zu erkennen, dass die Intensität der Spektrallinie bei 12,85 nm Wellenlänge (O-VII) für kürzere Pulse, d.h. höhere Intensitäten, deutlich zunimmt (vgl. Abbildung 4.5).

Mit diesem Modell kann man versuchen, den Verlauf der Konversionseffizienz (Abbildung 4.9) auch quantitativ zu verstehen. Dazu kann man die Skalierung der Elektronentemperatur mit der Intensität nach Gleichung (2.27) benutzen, um in der x-Achse in Abbildung 4.10 anstatt der Elektronentemperatur die Intensität darzustellen. Die Kurve für die Anzahldichte der O-VI Ionen kann dann in die Grafik der Abhängigkeit der Effizienz von der Intensität eingezeichnet werden (Abbildung 4.11). Im Gegensatz zu Abbildung 4.9 zeigt diese nur die

4.4. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer

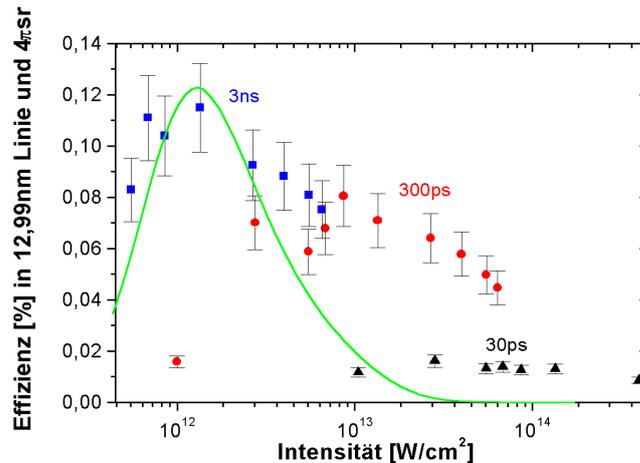


Abbildung 4.11.: Konversionseffizienz in der 12,99 nm Linie in Abhängigkeit von der Laserintensität bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate). Die eingezeichnete Kurve ist der Verlauf der Anzahldichte der O-VI Ionen, berechnet mit dem im Text beschriebenen Modell.

Effizienz in der 12,99 nm Linie entsprechend der einzelnen Ionensorte. Das Maximum der Kurve für die Anzahldichte wurde dem Maximalwert für die Effizienz bei $1,3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ zugeordnet.

Der Verlauf der Kurve gibt den Verhalten der Effizienz bei einer Pulsdauer von 3 ns relativ gut wieder. Bei höheren Intensitäten und kürzeren Pulsen dagegen ergibt sich eine deutliche Abweichung. Die Ionenpopulation der O-VI Ionen im Plasma kann also nicht so schnell abnehmen, wie das Modell suggeriert. Um die Gültigkeit des Modells weiter zu überprüfen, wurden die Messungen durchgeführt, die im folgenden Abschnitt beschrieben sind.

4.4.3. Emission im Spektralbereich 1,5–2,5 nm

Sauerstoff besitzt im Wellenlängenbereich von 1,5–2,5 nm zwei Serien von Spektrallinien, die zu Helium-ähnlichen (O-VII) und Wasserstoff-ähnlichen (O-VIII) Ionen gehören. Es handelt sich dabei um Innerschalenübergänge auf den jeweils energetisch niedrigsten unbesetzten Zustand, das ist bei O-VII der $1s^2$ -Zustand, bei O-VIII der $1s$ -Zustand. In diesem Spektralbereich kann man also die Population dieser zwei höher geladenen Ionensorten genauer untersuchen.

Zur Beobachtung dieses Spektralbereichs wurde ein zweiter Spektrograph mit einem Gitter gleicher Bauart verwendet, der parallel und zeitgleich mit dem Spektrographen für den EUV-Bereich betrieben wurde. Insofern sind die Messungen direkt mit den EUV-Messungen korreliert. Leider stehen für den Spektrographen keine Kalibrierungsdaten zur Verfügung, so dass nur Relativwerte angegeben werden können.

4.4.4. Ergebnisse und Diskussion

In Abbildung 4.12 sind Spektren für drei Pulsdauern und bei einer mittleren Leistung von 5 kW im Burst gezeigt. Man erkennt, dass im Unterschied zum EUV-Bereich nun die

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

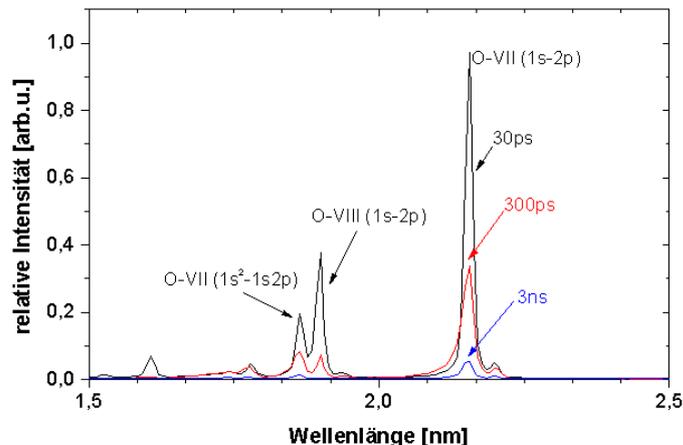


Abbildung 4.12.: Spektren im Bereich 1,5–2,5 nm für drei Pulsdauern bei einer Leistung von 5 kW im Burst (blau: 3 ns, rot: 300 ps, schwarz: 30 ps Pulsdauer)

höchsten Linienintensitäten für die kürzeste Pulsdauer von 30 ps zu beobachten sind. Interessant ist das Verhalten der O-VIII Linie (1s-2p) bei 1,9 nm Wellenlänge. Bei 3 ns Pulsdauer ist sie nicht detektierbar, während sie mit höherer Intensität, d.h. kürzerer Pulsdauer, deutlich anwächst. Dies ist wiederum ein deutlicher Hinweis darauf, dass mit steigender Intensität die Anzahl der O-VIII Ionen ansteigt, was auf eine Erhöhung der Elektronentemperatur im Plasma hindeutet.

Um ein Maß für die Effizienz zu erhalten, mit der Strahlung in diesem Spektralbereich erzeugt wird, sind in Abbildung 4.13 die normierten Werte für eine Integration über die Linie bei 2,16 nm (O-VII, 1s²-1s2p) dargestellt. Man erkennt, dass mit steigender Intensität die Effizienz ansteigt. Außerdem scheint eine optimale Intensität noch nicht erreicht zu sein, eine weitere Steigerung würde auch die Effizienz erhöhen. Allerdings zeigen auch diese Messungen, dass bei gleicher Intensität wieder die längere Pulsdauer höhere Effizienzergebnisse erzielt.

Verglichen mit dem EUV-Bereich erhält man also ein umgekehrtes Verhalten der Konversionseffizienz in Abhängigkeit von der Intensität. Um dies quantitativ zu verstehen, ist in die Abbildung 4.13 der Verlauf der Ionenpopulation von O-VII in Abhängigkeit der Laserintensität eingezeichnet. Diese Kurve wurde wieder mit dem im vorherigen Abschnitt erklärten Modell errechnet. Man erkennt, dass der Verlauf der Effizienz mit dieser Kurve nicht zu erklären ist. Während das Modell in diesem Spektralbereich bereits einen Abfall der Anzahldichte der Helium-ähnlichen Ionen erwartet, steigt dagegen die Konversionseffizienz weiter an. Dies zeigt deutlich, dass man mit Hilfe des LTG-Modells und einer einfachen Skalierung von Elektronentemperatur und Intensität (Gleichung (2.27)) zwar qualitativ den gemessenen Verlauf der Konversionseffizienzen sowohl in diesem Spektralbereich als auch im EUV-Bereich erklären kann. Eine quantitative Beschreibung ist allerdings nicht ohne weiteres möglich. Ursache hierfür kann zum einen sein, dass beim Abkühlen des Plasmas auch Ionen, die ursprünglich höher geladen waren (z.B. O-VII), durch Rekombination mit einem weiteren Elektron zu O-VI werden und entsprechend Strahlung emittieren. Dies könnte er-

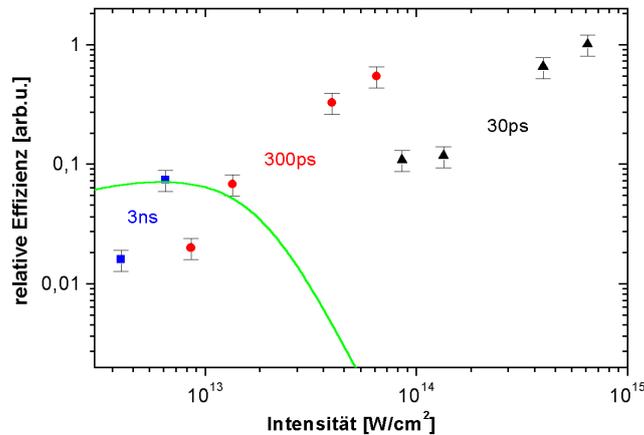


Abbildung 4.13.: Normierte Effizienz für die O-VII Linie bei 2,16 nm Wellenlänge in Abhängigkeit der Laserintensität (Quadrate: 3 ns, Kreise: 300 ps, Dreiecke: 30 ps Pulsdauer). Die eingezeichnete Kurve ist der Verlauf der berechneten Anzahldichte der O-VII Ionen.

klären, warum die Effizienz in Richtung höherer Intensität unterschätzt wird. Zudem kann die im LTG angenommene Ionenpopulationsverteilung nicht mit den Gegebenheiten im Plasma übereinstimmen. Weiterführende nicht-LTG Modelle könnten hier eine Verbesserung bringen [Hut87]. Hierzu wären allerdings umfangreiche theoretische Berechnungen nötig, da in diesen Modellen meist komplexe Ratengleichungen für die einzelnen Ionensorten gelöst werden müssen. Abschließend kann eine andere Proportionalität als die in [Pue70] beschriebene zwischen Laserintensität und Elektronentemperatur das Modell verändern.

4.5. Abschließende Diskussion

Die Experimente in diesem Kapitel befassten sich mit der Untersuchung eines Wasserstrahl-Targets für ein laserinduziertes Plasma. Es konnte gezeigt werden, dass ein dünner Jet ein geeignetes Target auch bei der Verwendung eines Laser mit einer hohen mittleren Leistung im Bereich einiger kW darstellen kann. Dabei liefern Repetitionsraten bis zu 250 kHz eine hinreichende Puls-zu-Puls Stabilität der EUV-Emission. Nicht untersucht wurden allerdings thermische Effekte, die bei einem Laser mit tatsächlicher kontinuierlicher kW-Leistung den Jet eventuell negativ beeinflussen könnten. Neben der EUV-Strahlung, die für die Lithographie benutzt wird, entstehen auch mehrere 100 W Röntgenleistung (sogenannte off-band Strahlung), die nicht verwendet wird. Diese kann zu einem Aufheizen der Komponenten in der Targetkammer führen und damit auch die Düse und den Jet selbst heizen.

Es wurde eine optimale Laserintensität gefunden, bei der die Konversionseffizienz von Laserstrahlung in EUV-Licht bei 13 nm Wellenlänge ein Maximum erreicht. Diese liegt im Bereich von 10^{12} W/cm² für Laserpulsdauern von einigen Nanosekunden. Bei diesen Laserparametern ist die Kopplung von Laserenergie in das Plasma über Stoßabsorption optimal

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

und die Anzahldichte der O-VI Ionen im Plasma ist maximal, was man im Modell eines Plasmas im LTG verstehen kann.

Der höchste Wert der Konversionseffizienz liegt bei 0,12% (in $4\pi\text{sr}$) in der O-VI Linie bei $\lambda = 12,99$ nm Wellenlänge ($h\nu = 95$ eV). Dieser Wert soll nun mit einer nach den Gleichungen (2.31) und (2.32) ermittelten Effizienz verglichen werden. Die Berechnung von E_{min} erfolgt nach folgenden Abschätzungen: Die Ionisierungsenergie für die Erzeugung eines fünffach geladenen Sauerstoffions beträgt $\sum E_I^5 \approx 300$ eV. Eine gute Näherung für die Plasmatemperatur ist $k_B T_j \approx 60$ eV, wobei im VTG Ionen und Elektronen dieselbe Temperatur besitzen (vgl. Abschnitt 4.4). Für die Ermittlung der Energie aller möglichen Übergänge im O-VI Ion werden alle in [Kel] tabellierten Spektrallinien im Wellenlängenbereich 1-50 nm verwendet, als Gewichtungsfaktoren γ_j dienen die dort angegebenen relativen Intensitäten, jeweils normiert auf die Intensität der Linie bei 12,99 nm Wellenlänge. Es folgt ein Wert von $\sum_{j=\alpha}^{\omega} \gamma_j h\nu_j \approx 800$ eV. Die Summe aller einzelnen Beiträge ergibt $E_{min} \approx 1640$ eV. Man erkennt, dass $\sum_{j=\alpha}^{\omega} \gamma_j h\nu_j$ den größten Anteil zu E_{min} liefert und daher Gleichung (2.32) verglichen mit Gleichung (2.30) eine wesentliche Verbesserung des Modells darstellt. Würde jedes Ion genau ein Photon in eine beliebige Richtung emittieren, folgt aus der Summe der einzelnen Beiträge von E_{min} eine theoretisch mögliche Konversionseffizienz von $\eta \approx 6\%$ für einen Raumwinkel von $4\pi\text{sr}$.

Dieser Wert zeigt eine große Abweichung von der besten gemessenen Effizienz. Grund sind eine Reihe von Faktoren, die die Konversionseffizienz im Experiment zusätzlich reduzieren. So ist es nicht möglich, die komplette Laserstrahlung in das Plasma einzukoppeln, da ein Teil der Strahlung reflektiert wird, wenn das Plasma optisch dick wird (vgl. Abschnitt 2.2). Dabei können Verluste von 30-90% auftreten [TD99]. Ein weiterer wichtiger Punkt ist die Tatsache, dass die Anregung einer einzelnen Ionensorte in einem Plasma unmöglich ist. Dies ist in Abbildung 4.10 zu erkennen, selbst im Maximum beträgt die relative Häufigkeit von O-VI Ionen nur $n_5/n_{tot}^i = 0,33$. Berücksichtigt man für die Effizienzberechnung zusätzlich diese Häufigkeit und eine Einkopplung der Laserstrahlung in das Plasma von 50%, indem man sie mit der Effizienz von 6% multipliziert, so folgt ein Wert im Bereich um 1% ($4\pi\text{sr}$). Allerdings konnte auch dieser Wert in den beschriebenen Experimenten nicht annähernd erreicht werden.

Abschließend soll ein Vergleich der Ergebnisse mit anderen, in der Literatur veröffentlichter Messungen erfolgen. Es handelt sich dabei um Arbeiten von:

- Hertz et al.: Target: Ethanoltröpfchen (Durchmesser 15 μm), Laser 8 ns Pulsdauer, Energie 700 mJ, Intensität $I = 7 \cdot 10^{13}$ W/cm², Effizienz $\eta = 0,11\%$ ($4\pi\text{sr}$) [HRBM95]
- Jin et al.: 20 μm Wasser-/Eistropfen, 10 ns, 300 mJ, $I = 10^{11}$ W/cm², $\eta = 0,6\%$ ($4\pi\text{sr}$) [JRST95]
- Benschop et al.: 20 μm Wassertropfen, 8 ns, 400 mJ, $I = 4 \cdot 10^{13}$ W/cm², $\eta = 0,11\%$ ($4\pi\text{sr}$) [BDO00]
- Düsterer et al.: Wassertropfen 15 μm , 120 ps, 50 mJ, $I = 2 \cdot 10^{15}$ W/cm², $\eta = 0,23\%$ ($4\pi\text{sr}$) [DSZ⁺01]

Diese Messungen wurden bei wesentlich geringeren Repetitionsraten und höheren Einzelpulsenenergien als beim burst-mode Laser durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.14

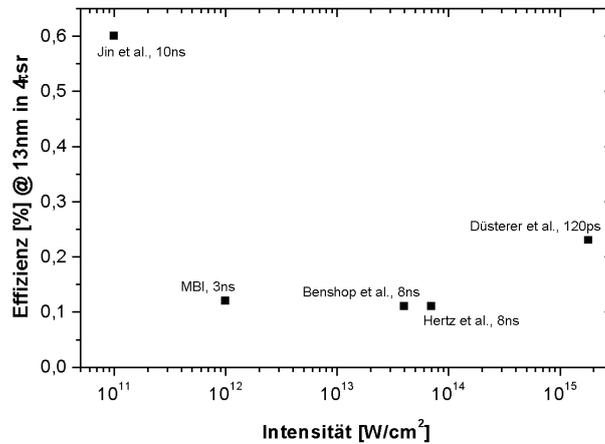


Abbildung 4.14.: Vergleich der in der Literatur veröffentlichten Konversionseffizienzen von Wasser-/Ethanoltargets für 13 nm Wellenlänge

nochmals zusammengefasst. Es zeigt sich, dass in keinem Fall eine Effizienz nahe bei 1% ($4\pi\text{sr}$) realisiert werden konnte. Die in den ersten drei Veröffentlichungen beschriebenen Laserparameter liegen im Bereich der in dieser Arbeit gemessenen optimalen Parameter, d.h. ns-Laserpulsdauer und nicht zu hohe Intensitäten. Die Effizienzwerte der ersten und dritten Veröffentlichung stimmen dabei mit den in dieser Arbeit gemessenen überein.

Die in [DSZ⁺01] geschilderten Messungen erreichen zwar auch ähnlich Effizienzen, doch bei vollkommen anderen Laserparametern, einer relativ hohen Intensität und ps-Pulsdauern. Eine mögliche Erklärung dafür liefern die in Abschnitt 4.4.3 beschriebenen Messungen. Danach sollten die Anregungsbedingungen in [DSZ⁺01] vor allen Dingen zu einer Produktion von hoch geladenen Sauerstoffionen (O-VII und O-VIII) führen. Dadurch kann die Intensität der O-VII Spektrallinie bei 12,85 nm Wellenlänge deutlich zunehmen (vgl. Abbildung 4.5). Aufgrund der geringen spektralen Auflösung des in [DSZ⁺01] verwendeten Spektrographen [JTT⁺94] ist allerdings keine Trennung der Linien bei 12,85 nm und 12,99 nm (von dem niedriger geladenen O-VI stammend) möglich. Die Effizienzen könnten also im wesentlichen die Strahlung innerhalb der O-VII-Linie und nicht wie bei den anderen Arbeiten die der O-VI-Linie nachvollziehen, woraus die gemessenen Abhängigkeiten von den Laserparametern folgen könnten.

Verglichen mit den anderen Messungen zeigt der in [JRST95] gemessene Effizienzwert eine Abweichung um einen Faktor 3–6. Die Unterschiede in der Effizienz sind aufgrund der Laser- und Targetparameter nicht zu erklären und eventuell auf die unterschiedliche Messtechnik zurückzuführen. Es ist nämlich in keinem in der Literatur beschriebenen Experiment gelungen, eine ähnlich hohe Effizienz mit einem Wasserjet zu reproduzieren.

Der Vergleich der Literaturwerte lässt vermuten, dass sich die in der vorliegenden Arbeit maximal gemessene Konversionseffizienz nicht ohne weiteres deutlich steigern lässt, da die veröffentlichten Werte aus anderen Experimenten im gleichen Bereich liegen. Von Seiten des Lasers scheint es vielleicht durch die Verwendung von Vorpulsen die Möglichkeit zu geben,

4. Untersuchung der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets

die Effizienz zu erhöhen [BRH96]. Es ist aber fraglich, ob man in einen Bereich oberhalb von 1% ($4\pi\text{sr}$) vordringen kann.

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

Die Untersuchungen im vorherigen Kapitel beschäftigten sich mit der EUV-Emission eines Wasserstrahl-Targets. Sauerstoff erwies sich dabei als Linienstrahler im EUV-Bereich, wobei eine einzelne Linie für die Lithographie ausgewählt wird. Da aber die Multilayerspiegel eine gewisse Bandbreite besitzen, kann auch ein kontinuierlicher Strahler verwendet werden, der die ganze Spiegelbandbreite nutzt. Kontinuierliche EUV-Spektren werden von Targetmaterialien mit hoher Kernladungszahl emittiert. Allerdings darf die Quelle kein Debris erzeugen, weshalb nur Gase geeignet sind. Das Edelgas Xenon ist das Gas mit der höchsten Kernladungszahl, das nicht radioaktiv ist. Aus den eben genannten Gründen wurden an Xenon neben dem Wasserjet die meisten Experimente zur Überprüfung der Eignung als Targetmaterial für die EUV-Lithographie durchgeführt. Diese Untersuchungen beschäftigten sich dabei mit den verschiedenen Targetsystemen Gaspuls-Target [FBD⁺00, KM01], Cluster-Target [KBKS99, MST⁺01] und Kryo-Flüssigkeitstarget [HRBH00, HBHH00]. In der vorliegenden Arbeit wurden Xenon-Cluster-Targets und ihre Emissionscharakteristik im EUV-Bereich untersucht.

5.1. Erzeugung und Eigenschaften von Clustern

Cluster besetzen die Region zwischen Atomen/Molekülen und der kondensierten Phase. Sie bestehen aus einer endlichen Anzahl $N \geq 2$ Teilchen, wobei man auch noch bei einer Größe von mehreren Millionen Teilchen von einem Cluster spricht [Hag92]. Die Bindung zwischen den einzelnen Teilchen wird dabei durch die kurzreichweitigen van-der-Waals-Kräfte vermittelt, das sind induzierte Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zwischen neutralen Atomen oder Molekülen. Die Erzeugung von Clustern geschieht durch die adiabatische Expansion eines aus einer Düse austretenden Gases in das Vakuum. Dabei wird die innere thermische Energie des Gases in gerichtete kinetische Energie konvertiert. Unter bestimmten Expansionsbedingungen wird das Gas überkritisch und Kondensation findet statt, es bilden sich Cluster [Hag92].

Aus verschiedenen Experimenten ist bekannt, dass die Clustergröße mit steigendem Gasdruck p_0 und fallender Temperatur T_0 ansteigt [HO72]. Jedoch gibt es keine generelle Theorie, die den Startpunkt der Bildung von Clustern in einem freien Gasstrahl vorhersagen kann. Hagena und Obert konnten einen empirischen Parameter finden, der von der experimentellen Situation abhängt und unterschiedliche Düsengeometrien vergleichbar macht (Prinzip der korrespondierenden Düsen), den sogenannten Hagena-Parameter Γ^* [HO72, Hag92]:

$$\Gamma^* = k \frac{(d/\tan \alpha)^{0,85} p_0}{T_0^{2,29}} \quad (5.1)$$

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

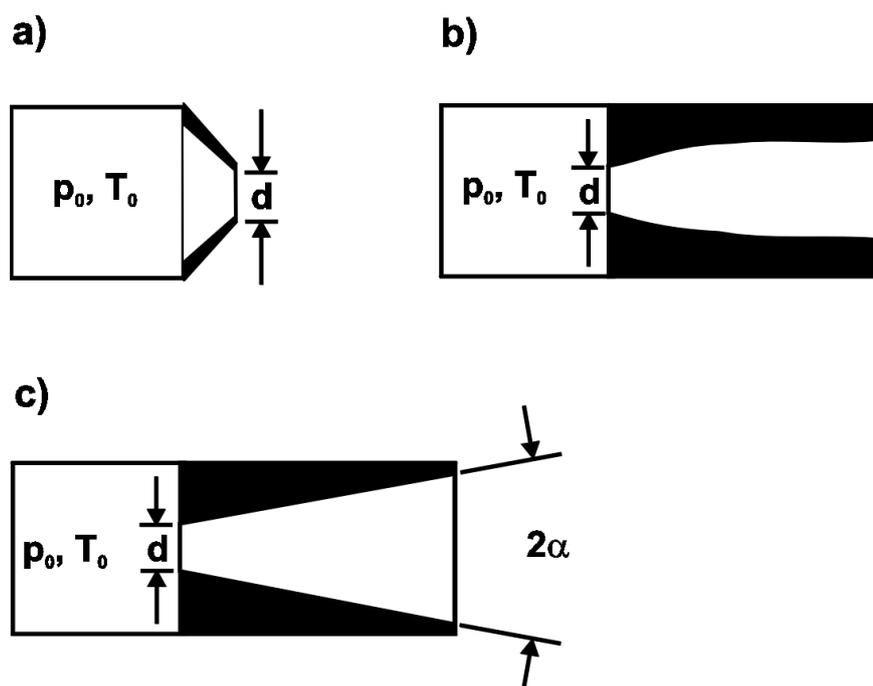


Abbildung 5.1.: Verschiedene Düsenformen, die zur Erzeugung von Clustern verwendet werden können: a) Schall-Düse, b) Laval-Düse, c) Überschall-Düse

Dabei bezeichnet d den Düsendurchmesser (in μm) und α den Expansionshalbwinkel (siehe Abbildung 5.1). Der Hintergrunddruck des Gases in der Düse p_0 muss in mbar angegeben werden, die Starttemperatur des Gases T_0 in Kelvin. Bei einem Winkel von $\alpha = 45^\circ$ spricht man von einer Schall-Düse, bei einem schmaleren Winkel von einer Überschall-Düse, entsprechend der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Gases. Darüber hinaus gibt es noch die Form der Laval-Düse (Abbildung 5.1). In den in diesem Kapitel beschriebenen Experimenten wurde eine Überschall-Düse mit einem Öffnungsdurchmesser von $400 \mu\text{m}$, einem Expansionshalbwinkel von $\alpha = 3, 5^\circ$ und einer Düsenkanallänge von 7 mm verwendet. Die Konstante k in der Hagena-Formel hat für jede Atomsorte einen spezifischen Wert und wächst mit steigendem Z ($k \approx 4$ für Helium, 180 für Neon, 1700 für Argon, 2900 für Krypton und 5500 für Xenon [WGSM89]). Die Bildung von Clustern startet, wenn der Hagena-Parameter einen Wert von ~ 300 überschreitet, wobei die mittlere Größe der Cluster ungefähr mit $(\Gamma^*)^{2,0-2,5}$ ansteigt [DDR⁺96]. Große Cluster ($N > 10^4$ Atome pro Cluster) dominieren bei einem Wert von $\Gamma^* > 5 \cdot 10^4$ [WGSM89]. Für die verwendete Düsengeometrie ergibt sich für Xenon schon bei einem Hintergrunddruck p_0 von 5 bar und einer Temperatur von 300 K ein Parameter von $\Gamma^* \geq 10^5$, was die Existenz von großen Clustern im Gaspuls erwarten lässt.

Die Bildung von Clustern hängt also neben der Temperatur und dem Druck vom Düsen-design ab. Außerdem besteht über die Konstante k eine Abhängigkeit vom verwendeten Material, wobei sehr leichte Elemente nur kleine Cluster bilden, während bei Xenon sehr große Cluster entstehen. Ein weiterer wichtiger Punkt ist die Qualität des Vakuums, in das das Gas expandiert. Die Anzahl der Restgasatome darf hier nicht zu groß sein, damit es zu möglichst wenig Stößen mit den Gasatomen kommt. Die Stoßprozesse würden die Clusterbildung nega-

5.1. Erzeugung und Eigenschaften von Clustern

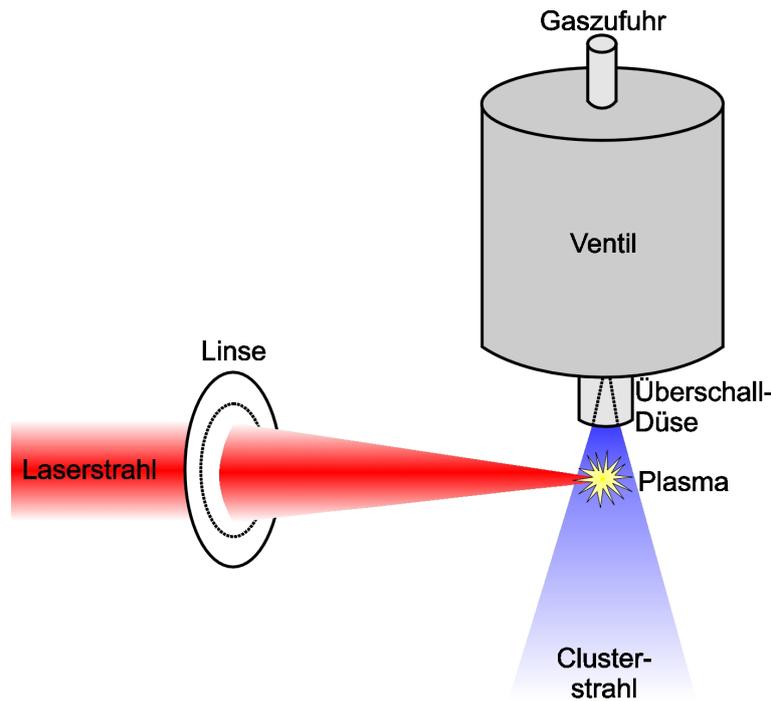


Abbildung 5.2.: Schematische Darstellung eines Cluster-Targets

tiv beeinflussen. Erfahrungsgemäß ist ein Vakuumdruck von kleiner als 10^{-5} mbar notwendig.

Die Geschwindigkeit v des Gasjets aus einer Überschalldüse ist für monoatomare Gase mit der Atommasse m gegeben durch [Hag81]:

$$v = 2,98 \cdot \delta^{2/3} \sqrt{\frac{2k_B T_0}{m}} \quad (5.2)$$

Die Größe δ wird als reduzierter Quellabstand bezeichnet und ist vom Abstand x zur Düsenöffnung abhängig, für den die Geschwindigkeit berechnet werden soll:

$$\delta = \frac{x}{0,74(d/\tan \alpha)} \quad (5.3)$$

Die Gasdichte n im Jet an dieser Stelle ist dabei [Hag81]:

$$n = 0,15 \cdot n_0 \delta^{-2} \quad (5.4)$$

Hierbei bezeichnet n_0 die Gasdichte im Düsenreservoir, die durch die Temperatur und den Druck bestimmt wird:

$$n_0 = 7,242 \cdot 10^{21} (p_0/\text{bar}) (K/T_0) \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^3} \quad (5.5)$$

Die charakteristischen Größen sind für die verwendete Düsengeometrie in Tabelle 5.1 aufgeführt.

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

Tabelle 5.1.: Charakteristische Größen der verwendeten Überschalldüse für eine Temperatur von 300 K. Aufgeführt sind die Werte n für drei verschiedene Gasdrücke p an einer Position 2 mm unterhalb der Düsenöffnung (d.h. $x = 9$ mm)

α	d	v	p	n
3,5°	400 μm	878 m/s	5 bar	$5,2 \cdot 10^{18}$ Atome/cm ³
3,5°	400 μm	878 m/s	20 bar	$2,1 \cdot 10^{19}$ Atome/cm ³
3,5°	400 μm	878 m/s	35 bar	$3,7 \cdot 10^{19}$ Atome/cm ³

5.1.1. Wechselwirkung von Clustern mit Laserstrahlung

Um die Vakuumanforderungen für ein Clustertarget zu erfüllen, erfolgt der Betrieb einer Clusterdüse gepulst und muss mit dem Laser synchronisiert werden. Der fokussierte Laserstrahl sollte außerdem dicht unterhalb der Düse auf die Cluster treffen (Abbildung 5.2), um in einen Bereich mit einer möglichst hohen mittleren Atomdichte zu treffen. Der Vorteil von Clustern im Vergleich zu einem normalen Gaspuls besteht darin, dass die lokale Atomdichte im Cluster wesentlich höher ist als im Gas. Sie erreicht fast Festkörpurniveau. Damit können bei der Wechselwirkung mit der Laserstrahlung auch größere lokale Elektronendichten entstehen, und die Elektronentemperaturen im Plasma erreichen hohe Werte bis in den keV-Bereich [DDR⁺96]. Da Xenon sehr große Cluster bilden kann, ist es als Clustertarget besonders geeignet.

Für die Wechselwirkung von Clustern mit der Laserstrahlung und dem damit verbundenen Prozess der Ionisierung der Cluster finden sich in der Literatur im wesentlichen drei Theorien. Diese sind im einzelnen:

- Mc Pherson et al. [MLT⁺93] beschreiben die Laser-Cluster-Wechselwirkung als einen Prozess, in dem die kollektive Bewegung von Elektronen der äußeren Schalen, hervorgerufen durch das Laserfeld, Löcher in inneren Schalen erzeugen kann und so das Atom ionisiert. Mit dieser Theorie, basierend im wesentlichen auf früheren Arbeiten von Boyer und Rhodes [BR85], konnten einige experimentelle Resultate erklärt werden, z.B. die Tatsache, dass die Intensität der Xe(M)- und Xe(L)-Schalen Emission von der Wellenlänge des anregenden Lasers abhängig ist [KBJ⁺97]. Allerdings ist die Theorie nur auf Cluster bis zu einer bestimmten Größe ($N \leq 100$) anwendbar.
- Rose-Petruck et al. [RPSWB97] entwickelten ein „Ionisations-Ignition-Modell“, in dem die kombinierten elektrischen Felder des Lasers und der dicht beisammen liegenden Clusterionen zu einer raschen höheren Ionisation der Cluster führen. Auch damit lassen sich beobachtete hohe Ionisierungsstufen der Atome in Clustern erklären [SBC96].
- Im Gegensatz zu den eben genannten schlagen Ditmire et al. [DDR⁺96] ein hydrodynamisches Modell der Clusteranregung vor, dominiert von Stoßionisation und Inverser Bremsstrahlung. Es behandelt einen Cluster als ein kleines Nanoplasma, dass, nachdem es vom Laserpuls signifikant aufgeheizt wurde, expandiert. Das Modell ist allerdings

5.1. Erzeugung und Eigenschaften von Clustern

nur dann anwendbar, wenn die Cluster groß genug sind, damit im wesentlichen der sich im Cluster aufbauende statische hydrodynamische Druck zur Expansion führt. Eine Coulomb-Explosion aufgrund der hohen Dichte von freien Elektronen und Ionen ist dagegen weniger relevant. Die Zeit τ_{ex} , bis die Cluster über hydrodynamische Expansion auf das Dichteniveau des umgebenden Gases expandiert sind, beträgt ungefähr:

$$\tau_{ex} \approx r_0 \sqrt{\frac{m_i}{Zk_B T_e}} \left(\frac{n_0}{n_s} \right)^{1/3} \quad (5.6)$$

Hierbei sind r_0 und n_0 der Ausgangs-Radius und die Ausgangs-Dichte der Cluster, Z der mittlere Ladungszustand der Ionen mit der Masse m_i und n_s die umgebende mittlere Gasdichte. Für eine Elektronentemperatur von $T_e = 1$ keV, einem $Z = 8$ und einer mittleren Dichte $n_0 = 10^{18}$ Atome/cm³ ergibt sich eine Expansionszeit von einigen ps. Die Expansion erfolgt mit der Plasmaschallgeschwindigkeit (Gleichung (2.20)). Mit diesem Modell lässt sich vor allen Dingen die Dynamik der Expansion gut beschreiben und damit Prozesse, die sich auf Zeitskalen von ps-ns abspielen. Dazu gehört z.B. der Einfluss von Vorpulsen des Lasers auf die Cluster [ZDP99].

Alle drei Modelle gehen von einer Anregung der Cluster mit sehr kurzen fs-Laserpulsdauern und entsprechend hohen Intensitäten aus. Entsprechend sind in der Literatur hauptsächlich Messungen an Clustertargets beschrieben, die Laser mit einer Pulsdauer im fs-Bereich, d.h. kürzer als die Expansionszeit τ_{ex} , verwenden [DDR⁺96, MST⁺01, HM00]. Dabei wurde besonders die Emission im weichen und harten Röntgenbereich untersucht, weniger im EUV-Bereich. Es existierte in der Literatur zu Beginn der Arbeiten erst eine Messung, die sich speziell mit der EUV-Emission von Xe-Clustern bei Benutzung eines fs-Lasers beschäftigte [MHK⁺00].

Allerdings waren Experimente mit einem als Xe-Cluster-Target bezeichneten Target bekannt, die unter Verwendung von ns-Pulsen mittlerer Intensität ($\sim 10^{12}$ W/cm²) hohe Konversionseffizienzen im EUV-Bereich erreichen [KBKS99]. Dies lässt sich auf den ersten Blick mit keinem der drei eben beschriebenen Modelle direkt erklären, da sie nur sehr kurze Laserpulse betrachten. Im Gegenteil sehen die Autoren in [DDR⁺96] Cluster in Verbindung mit ns-Lasern als ungünstig an, um eine starke EUV-Emission zu erreichen. Um dieses Problem näher zu untersuchen, sollten Messungen zum Einfluss der Laserpulsdauer auf die EUV-Emission im Bereich 13 nm eines Clustertargets mit Pulsen vorgenommen werden, die im Bereich der charakteristischen Expansionszeit liegen oder kürzer sind, aber auch mit wesentlich längeren Pulsen im ns-Bereich. Ein weiterer wichtiger Parameter ist dabei wieder die Laserintensität, die über einen großen Bereich (10^{11} W/cm²– 10^{18} W/cm²) variiert wurde. Die Ergebnisse konnten anschließend mit in der Literatur beschriebenen Messungen an Xenon-Gaspuls-Targets [FBS⁺99, KM01] verglichen werden. Zunächst werden die Messungen für relativ lange Laserpulse (ps-ns) und mittlere Intensitäten, die mit dem Nd:YLF burst-mode Laser durchgeführt wurden, vorgestellt. Am Ende dieses Kapitels findet sich die Beschreibung der Messungen mit fs-Pulsen und hohen Intensitäten, für die ein Ti:Sa-CPA-System verwendet wurde.

5.2. Bestimmung der Clustergröße mittels Lichtstreuung

Mit Hilfe des Hagena-Parameters kann man für eine vorgegebene Düsengeometrie überprüfen, ob die Bildung von Clustern zu erwarten ist. Dies sollte für die verwendete Düse der Fall sein. Um einen Wert für die Größe der Cluster zu erhalten, kann die Existenz von Clustern im Gaspuls mit Hilfe von Lichtstreuung nachgewiesen werden. Die Lichtstreuung ist dabei eine experimentell einfache Methode [vdH81]. Relativmessungen sind recht praktikabel zu realisieren, Absolutmessungen zur Clustergröße sind allerdings mit großen Unsicherheiten verbunden [BMB⁺93], wie im folgenden erläutert wird.

Für den Fall, dass der Radius r der Streuteilchen wesentlich kleiner ist als die Wellenlänge λ der Streustrahlung ($r/\lambda \ll 0,05$) [Ker69], ist die Rayleigh-Theorie für die Streuung an dielektrischen Sphären anwendbar. Der Wirkungsquerschnitt σ für ein einzelnes Teilchen mit einem Volumen V ist gegeben durch [Ker69, Ray99]:

$$\sigma = \frac{128\pi^5 r^6}{3\lambda^4} \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)^2 \sim \frac{V^2}{\lambda^4} \quad (5.7)$$

Dabei ist n die Brechzahl des Streuteilchens. Die wesentlichen Eigenschaften der Rayleighstreuung sind zum einen die $1/\lambda^4$ -Abhängigkeit, die z.B. dafür sorgt, dass man den Himmel blau sieht, und die quadratische Abhängigkeit vom Volumen. Für ein Ensemble von N Streuteilchen, die unabhängig voneinander, d.h. inkohärent streuen, erhält man den Wirkungsquerschnitt einfach durch eine Multiplikation des Streuquerschnitts für ein einzelnes Teilchen mit der Teilchenzahl N [Ker69].

In einem ersten Schritt lässt sich nun qualitativ überprüfen, ob sich im Gaspuls Cluster bilden. Wie eben dargestellt, ist das zu detektierende Streusignal I_S abhängig von der einfallenden Strahlung I_0 , der Clusteranzahl N_{clust} und der Anzahl der Atome pro Cluster $N_{at/clust}$:

$$I_S \sim I_0 \cdot N_{clust} \cdot V_{clust}^2 \sim I_0 \cdot N_{clust} \cdot N_{at/clust}^2 \quad (5.8)$$

Aus Experimenten ist bekannt, dass $N_{at/clust}$ quadratisch mit dem Hintergrunddruck p_0 des Gases skaliert [FFRT86]. Nimmt man an, dass das Gas zu 100% Cluster bildet, was näherungsweise erfüllt ist, gilt [DDR⁺96]:

$$N_{clust} = \frac{n_0}{N_{at/clust}} \quad (5.9)$$

Da die Gasdichte n_0 linear vom Hintergrunddruck abhängt (Gleichung (5.5)), ergibt sich für das Streusignal folgende Abhängigkeit vom Druck:

$$I_S \sim p_0^3 \quad (5.10)$$

Es ist also das Streusignal in Abhängigkeit des Drucks zu messen.

Prinzipiell ist auch eine absolute Bestimmung der Anzahl der Atome pro Cluster mit Hilfe der Rayleigh-Streuung möglich. Betrachtet werden soll an dieser Stelle die Situation, in der die Streustrahlung vertikal polarisiert ist und die Detektion in der Ebene senkrecht zur Polarisationsrichtung erfolgt. Für diesen Spezialfall ist das in ein Raumwinkelement $d\Omega$ gestreute Signal gegeben durch [Ker69]

$$\frac{I_S}{d\Omega} = I_0 N_{clust} \frac{9\pi^2 V_{clust}^2}{R^2 \lambda^4} \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)^2 \quad (5.11)$$

5.2. Bestimmung der Clustergröße mittels Lichtstreuung

mit dem Abstand R des Detektors von der Streuquelle. Angenommen wird dabei wiederum, dass alle Cluster die gleiche Größe besitzen und das Gas zu 100% Cluster bildet. Um die Zahl der Atome pro Cluster errechnen zu können, müssen noch folgende Relationen verwendet werden:

$$N_{clust} = \frac{V_{streu} \cdot \rho_{gas} \cdot N_A}{N_{at/clust} \cdot m_{mol}} \quad (5.12)$$

$$V_{clust} = \frac{N_{at/clust} \cdot m_{mol}}{\rho_{fl} \cdot N_A} \quad (5.13)$$

Mit V_{streu} ist das streuende Volumen bezeichnet, ρ_{gas} ist die Dichte von Xenongas, N_A ist die Avogadro-Konstante, m_{mol} ist die Molmasse von Xenon und ρ_{fl} ist die Dichte von flüssigem Xenon, die als Wert für die Dichte im Cluster herangezogen werden kann. Ein Einsetzen dieser Gleichungen in (5.11) und Auflösen nach $N_{at/clust}$ ergibt:

$$N_{at/clust} = \frac{I_S/I_0}{d\Omega} \cdot \left[\frac{9\pi^2}{R^2\lambda^4} \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)^2 \frac{V_{streu} \cdot \rho_{gas} \cdot m_{mol}}{\rho_{fl}^2 \cdot N_A} \right]^{-1} \quad (5.14)$$

Für die Berechnung von $N_{at/clust}$ ist die Messung des Streusignals I_S und der einfallenden Intensität I_0 notwendig. Die Unsicherheiten des Ergebnisses sind vor allen Dingen durch das nicht genau bekannte Streuvolumen und die Brechzahl des Clusters gegeben [BMB⁺93]. Außerdem wird eine mögliche Existenz von Clustern unterschiedlicher Größe nicht berücksichtigt. Daher ist die Bestimmung der Zahl der Atome pro Cluster mit einem Fehler von etwa einer Größenordnung behaftet.

Die nach dem Hagen-Parameter zu erwartende Anzahl der Atome pro Cluster deutet an, dass man sich mit der Clustergröße schon im Grenzbereich der Anwendbarkeit der Rayleigh-Theorie befindet. Für Teilchen beliebiger Größe wird die Lichtstreuung durch die allgemeinere Theorie von Mie beschrieben [Ker69, vdH81]. Ein wesentliches Merkmal von Mie-Streuung ist die stark winkelabhängige Intensität der Streustrahlung, in Vorwärtsrichtung wird mehr gestreut als in Rückwärtsrichtung. Bei dem hier betrachteten Spezialfall für die Rayleighstreuung dagegen ist die Streustrahlung isotrop. Eine Messung der Winkelverteilung der Streustrahlung kann also als Test für die Anwendbarkeit der Rayleigh-Theorie dienen und gleichzeitig eine obere Grenze für die Clustergröße liefern.

5.2.1. Versuchsaufbau und Durchführung

Für die Streuuntersuchungen wurde die mittels eines KDP-Kristalls frequenzverdoppelte Strahlung des Nd:YLF burst-mode Lasers verwendet ($\lambda = 523$ nm). Da das Signal eines gesamten Bursts zu stark war, wurde nur ein einzelner Puls verwendet. Über eine $\lambda/2$ -Platte wurde eine vertikale Orientierung der Polarisation eingestellt werden. Nach dem Kristall blockierte ein Glasfilter (BG7) die infrarote Strahlung, zwei Blenden und eine schwach fokussierende Linse ($f = 150$ cm) erzeugten einen dünnen Laserstrahl in der Targetkammer. Die Synchronisation von Gasausstoß und Laserstrahl erfolgte über das Triggersignal des Lasers. Der Laser arbeitete auf einer Frequenz von 0,5 Hz, während die Gasdüse mit 0,17 Hz betrieben wurde, d.h. jeder dritte Laserpuls traf einen Gaspuls. Die Düse, montiert am Deckel der Targetkammer, besteht aus einem elektromagnetischen Ventil, an dessen Ausgang sich

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

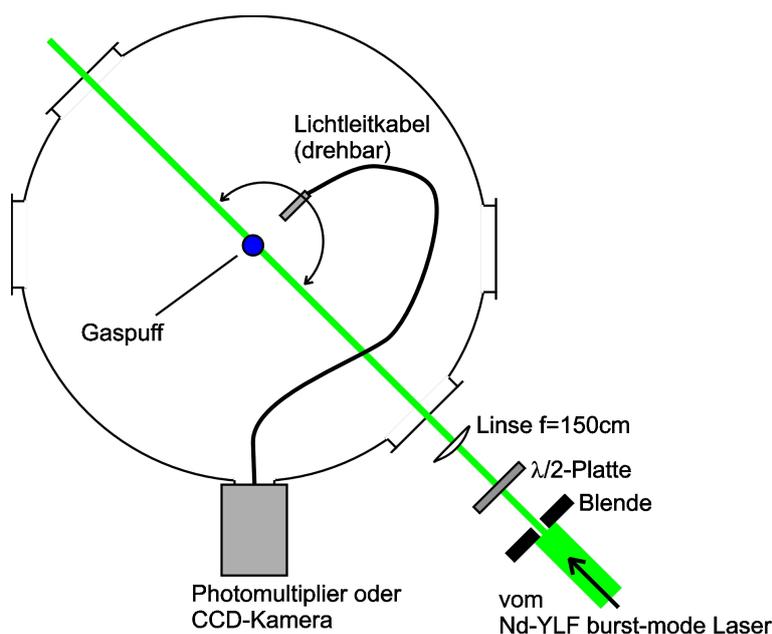


Abbildung 5.3.: Schematische Darstellung des Aufbaus für Lichtstreuungsexperimente

der Expansionskanal anschließt (Abbildung 5.21 rechts). Die niedrige Wiederholrate der Düse war notwendig, um vor einem Gasausstoß einen Druck in der Kammer von kleiner als 10^{-5} mbar zu erreichen und so die geeigneten Bedingungen für die Bildung von Clustern zu schaffen. Zu diesem Zweck evakuierten eine Turbodrumpumpe mit 1600 l/s und eine Vorpumpenkombination aus Wälzkolben- (500 m³/h) und Drehschieberpumpe (63 m³/h) die Targetkammer.

Für die winkelabhängige Untersuchung des Streusignals wurde ein Lichtleitkabel (Eingangsapertur 2 mm) auf einen Schrittmotor-getriebenen Drehtisch in einem Abstand von $R = 13$ mm von der Düse montiert. Das Kabel führte das aufgefangene Licht in einen Flansch an der Targetkammer, wo wahlweise ein Photomultiplier oder die CCD-Kamera des Röntgenspektrographen als Detektor dienten. Mit dem Photomultiplier ist man dabei in der Lage, noch sehr geringe Signale eines einzelnen Laserpulses nachzuweisen, während die CCD-Kamera über mehrere aufeinander folgende Pulse integrieren mußte. Zur Messung von I_0 wurde das Lichtleitkabel direkt in den Strahl gefahren und die Strahlung über Filter bekannter Transmission so weit abgeschwächt, dass die Detektoren nicht überbelichtet wurden. Der Aufbau ist in Abbildung 5.3 schematisch dargestellt.

Zunächst wurde mit dem Photomultiplier als Detektor die Abhängigkeit des Streusignals vom Druck unter einem Winkel zwischen Laserstrahl und Lichtleiter von 90° untersucht. Dabei reichte eine Laserpulsenergie von ca. 8 nJ aus, um ein Streusignal zu erhalten. Danach konnte bei konstantem Druck eine etwaige Winkelabhängigkeit des Streusignals durch ein Verfahren des Drehtisches untersucht werden. Abschließend wurde für die Messung zur Bestimmung der Clustergröße auch die CCD-Kamera als Detektor eingesetzt.

5.2. Bestimmung der Clustergröße mittels Lichtstreuung

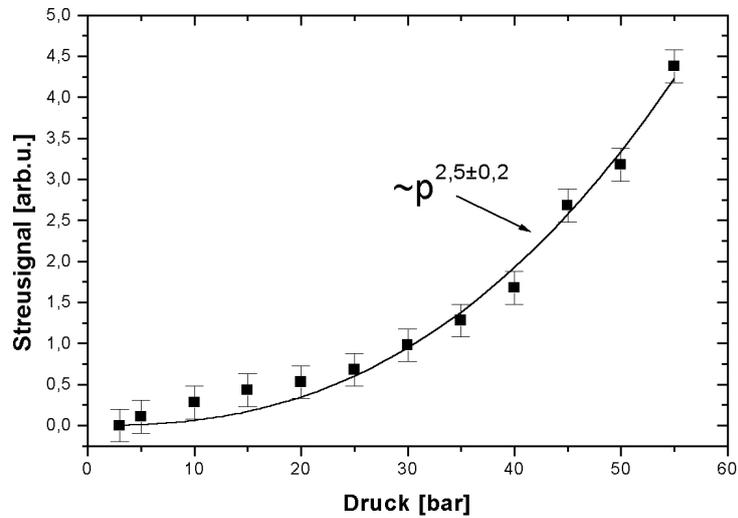


Abbildung 5.4.: Abhängigkeit des Streusignals vom Xenon-Düsendruck. Die Linie ist eine Anpassung an die Messwerte.

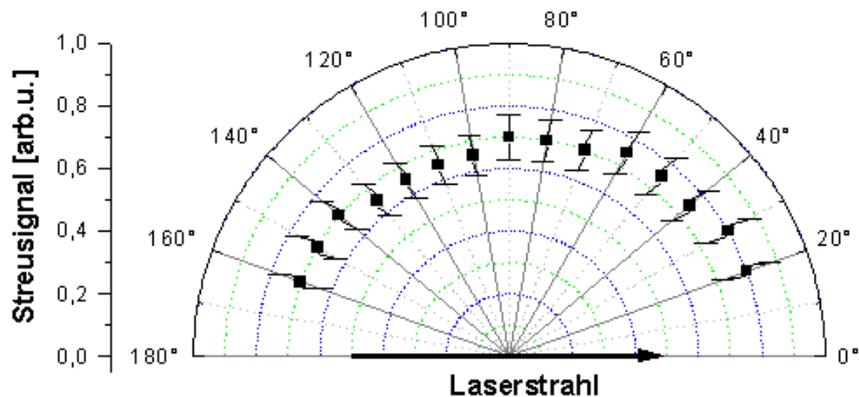


Abbildung 5.5.: Gemessenes Streusignal unter verschiedenen Beobachtungswinkeln

5.2.2. Ergebnisse

Das Ergebnis zur Messung des Streusignals in Abhängigkeit vom Druck unter einem festen Winkel senkrecht zum Laserstrahl ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Man erkennt eine Abhängigkeit vom Gasdruck $\sim p^{2,5\pm 0,2}$, was etwas geringer als der theoretische Wert 3 für die Potenz ist (Gleichung (5.10)). Eine Ursache ist die Tatsache, dass in der Praxis nicht alle Gasatome in Clustern identischer Größe gebunden sind. Trotzdem zeigt der nichtlineare Anstieg des Streusignals mit dem Druck an, dass die verwendete Düsengeometrie wie erwartet zu der Bildung von Clustern im Strahl führt. Sollten sich keine Cluster im Strahl befinden, könnte man aufgrund des sehr viel kleineren Streuquerschnitts eines Atoms verglichen mit einem Cluster überhaupt kein Streusignal detektieren. Zudem bedeutet die nichtlineare

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

Abhängigkeit des Signals vom Druck, dass die Clustergröße mit steigendem Druck ebenfalls ansteigt. Ansonsten würde man einen linearen Anstieg des Streusignals erwarten.

Die Untersuchung der Winkelabhängigkeit des Streusignals bei einem festen Gasdruck von 35 bar lässt keine ausgeprägte Abhängigkeit vom Beobachtungswinkel erkennen (Abbildung 5.5), so dass die Cluster noch nicht so groß sind, um in den Bereich der Mie-Streuung zu kommen.

Eine quantitative Berechnung der mittleren Clustergröße nach Gleichung (5.14) erfolgte aus den Messungen von I_S und I_0 mit Photomultiplier und CCD-Kamera. Es ergaben sich Werte von $I_S/I_0 = 6,9 \cdot 10^{-6}$ (Photomultiplier) und $I_S/I_0 = 3,8 \cdot 10^{-5}$ (CCD-Kamera), daraus folgt ein Wert von $0,3 \cdot 10^6$ bzw. $2 \cdot 10^6$ Atome pro Cluster bei 35 bar Xe-Druck. Der Mittelwert für die Clustergröße liegt somit bei $1,2 \pm 0,8 \cdot 10^6$ Atome pro Cluster. Entsprechend der Skalierung des Streusignals beginnt die Clustergröße bei 5 bar mit $1,2 \pm 0,8 \cdot 10^5$ Atomen pro Cluster. Für die Berechnung wurde ein Streuvolumen von $V_{streu} = 8 \text{ mm}^3$, eine Atomdichte von $\rho_{gas} = 3,7 \cdot 10^{19} \text{ Atome/cm}^3$ (abgeschätztes Volumen des Clusterstrahls an einer Position 2 mm unterhalb des Expansionskanals der Düse), eine Brechzahl für Xenoncluster von $n = 1,4$ [Mar70] und eine Dichte für flüssiges Xenon von $\rho_{fl} = 3,5 \text{ g/cm}^3$ angenommen. Damit ist die Charakterisierung des Clustertargets abgeschlossen.

5.3. Einfluss der Repetitionsrate auf die Röntgenemission

Wie in Kapitel 4 soll zunächst überprüft werden, ob das Target für die hohen Repetitionsraten innerhalb eines Laserbursts geeignet ist. Die Dauer des Gaspulses beträgt 5 ms, die eines Bursts $800 \mu\text{s}$. Der Gaspuls ist also lang genug, um von allen Laserpulsen während eines Bursts getroffen zu werden. Die Geschwindigkeit des strömenden Gases beträgt nach Gleichung (5.2) für 300 K am Düsenausgang ungefähr 800 m/s.

5.3.1. Versuchsaufbau und Durchführung

Der grundlegende Aufbau des Clustertargets ist bereits in Abschnitt 5.2.1 beschrieben worden. Für die Messung der Röntgenspektren wurde zur Fokussierung des Laserstrahls wie beim Wassertarget derselbe Lasermonochromat mit einer Brennweite von $f = 6 \text{ cm}$ verwendet. Der Spektrograph zur Aufnahme der kalibrierten Xe-Spektren (Tgs1) befand sich ebenfalls wie bei den Experimenten am Wasserjet am selben Flansch der Targetkammer unter einem Winkel von 30° zum Laserstrahl. Die Abstände von Gitter und CCD zum Target wurden identisch gewählt und es wurde dasselbe Zr-Filter vor dem Gitter verwendet. Zur kontinuierlichen Kontrolle der EUV-Emission diente eine Diode (Nr. 1) mit Zr-Filter in der Targetkammer in einem Abstand von ca. 5 cm vom Plasma. Zusätzlich war ein zweiter Spektrograph (Tgs2) in Richtung des Laserstrahles an der Kammer montiert, um eine etwaige Winkelabhängigkeit der Emission zu überprüfen. Dieser Spektrograph bestand ebenfalls aus einem Transmissionsgitter, allerdings nur mit einer Liniendichte von 2000 Linien/mm. Anstatt eines Spaltes war eine Blende mit einem Durchmesser von $100 \mu\text{m}$ und ein Zr-Filter vor dem Gitter montiert, so dass in der 0. Ordnung des Spektrums eine Messung der Quellgröße in Vorwärtsrichtung vorgenommen werden konnte (Prinzip der Lochkamera). Der Abstand von Plasma zu Blende betrug 69 cm und von Blende zu CCD-Kamera 32 cm, auf dem CCD-Chip war das

5.3. Einfluss der Repetitionsrate auf die Röntgenemission

Spektrum von 0. Ordnung bis ca. 18 nm komplett zu sehen. Allerdings liegen für diesen Spektrographen keine Kalibrierungsdaten vor, so dass keine absoluten Photonenzahlen gemessen werden können. Alternativ zum Spektrographen konnte der Flansch mit einem Glasfenster versehen werden. Direkt hinter dem Fenster diente eine Diode (Nr. 2) zur Registrierung des durch das Clustertarget transmittierten Laserlichtes. Eine Kombination aus zwei Glasfiltern stellte dabei sicher, dass nur die infrarote Strahlung des Lasers detektiert wurde. Mit dem hier beschriebenen Aufbau, dargestellt in Abbildung 5.6, wurden auch die Experimente der folgenden zwei Abschnitte durchgeführt.

Für die Messung zum Einfluss der Repetitionsrate auf die Röntgenemission war nicht der Tgs2, sondern das Fenster mit dahinter positionierter Diode an die Targetkammer montiert. Bei einer Pulsdauer von 30 ps wurden für 25–800 Einzelpulse pro Burst, d.h. Repetitionsraten von 31,25–1000 kHz, Spektren aufgenommen und das transmittierte Licht registriert. Dabei

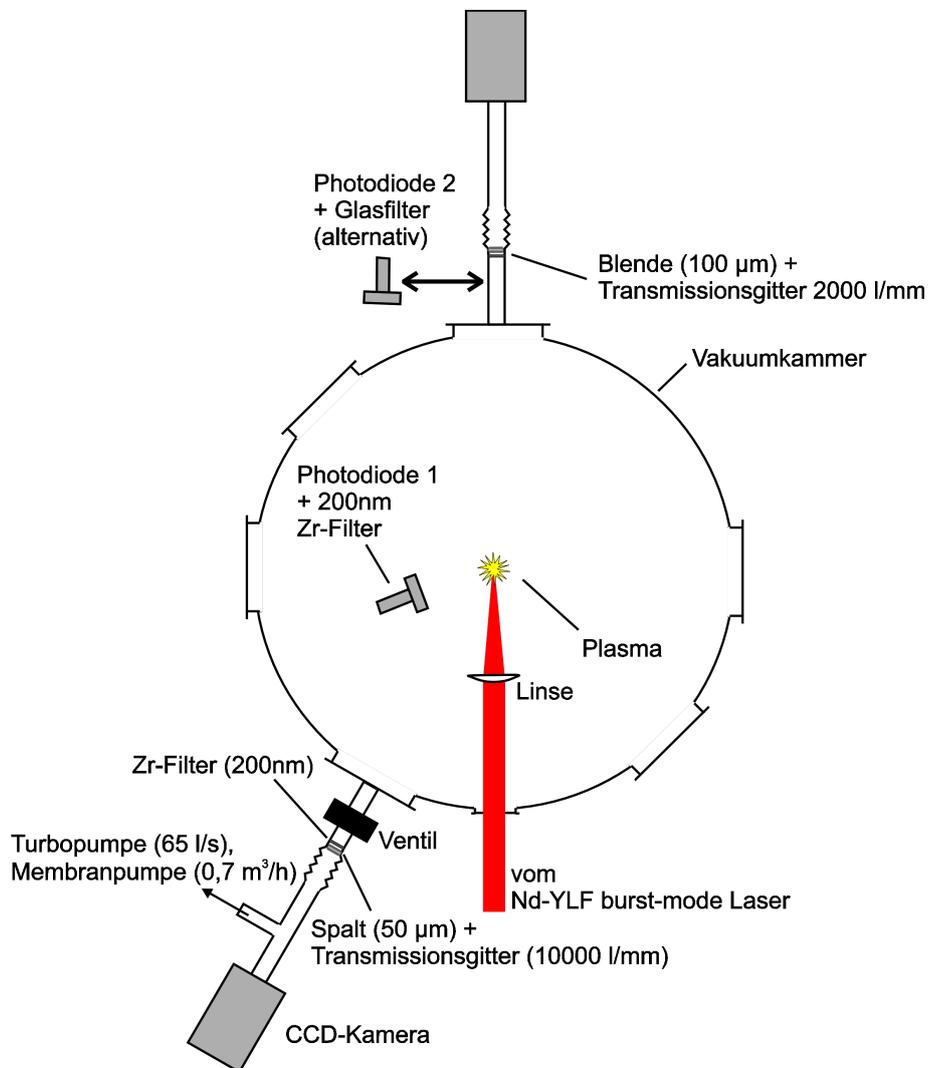


Abbildung 5.6.: Experimenteller Aufbau des Xenon-Cluster-Targets zur Messung der Röntgenspektren

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

konnte durch eine Variation der Energie pro Burst die Intensität pro Einzelpuls auf einem konstanten Wert ($1,6 \cdot 10^{14}$ W/cm²) gehalten werden und so ein Einfluss der Laserintensität auf das Emissionsverhalten ausgeschlossen werden. Als Maß für die EUV-Emission dienten dabei die Konversionseffizienzen, errechnet aus den Xe-Spektren bei einer Wellenlänge von 13,4 nm in einer relativen spektralen Bandbreite von 2,2% (siehe Abbildung 5.11). Auch die Röntgendiode in der Kammer liefert einen Wert für die Stärke der Emission, allerdings integriert über einen weiten Spektralbereich. Insbesondere registrierte die Diode 1 dabei auch Strahlung von hochgeladenen Xenonionen um 1–2 nm.

5.3.2. Ergebnisse und Diskussion

Die Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Repetitionsrate, errechnet aus den aufgenommenen Spektren (vgl. Abbildung 5.11), ist in Abbildung 5.7 dargestellt. Die Fehlerbalken geben den relativen Fehler der Messung an. Man erkennt einen deutlichen Abfall hin zu höheren Repetitionsraten. Bei Repetitionsraten unterhalb von 250 kHz erhält man ungefähr konstante Werte. Um eine Erklärung für dieses Verhalten zu finden, muss man die Messungen zur Transmission der Laserstrahlung heranziehen (Abbildung 5.8). Zur Berechnung des Transmissionswertes wurde dabei jeweils das mit einem Oszilloskop gespeicherte Signal der Diode 2 eines Bursts einmal mit und einmal ohne Gaspuls ausgewertet. Da man in einem Burst jeden Puls einzeln auswertet und danach den Mittelwert über alle Pulse bildet, erhält man für den Mittelwert eine gute Messstatistik. Allerdings wurde die Messreihe nicht zeitgleich mit den EUV-Spektren aufgenommen, so dass die Ergebnisse nicht direkt mit den Effizienzen korreliert sind. Dennoch kann man die Ursache für den Abfall bei hohen Repetitionsraten erkennen. Die Transmission des Targets nimmt bei hohen Wiederholraten deutlich zu, erst für Raten kleiner als 250 kHz erhält man konstante Werte. Umgekehrt dazu steigt die mit der Diode gemessene Röntgenemission mit fallender Transmission stark an. Die Ursache für die steigende Transmission des Targets findet man, wenn man die Oszilloskopbilder der Pulse mit Gaspuls betrachtet (Abbildung 5.9). Bei einer Repetitionsrate von 500 kHz durchdringen eine Reihe von Laserpulsen das Target ungehindert, deshalb findet man nicht immer zu einem Laserpuls einen entsprechenden Röntgenpuls. Es ist also zu diesen Zeitpunkten keine Materie in der Wechselwirkungszone von Laserfokus und Clustertarget vorhanden, die Zeit zwischen zwei Pulsen reicht nicht aus, um das Volumen mit neuem Material aufzufüllen. Über die Geschwindigkeit des Gasjets und den zeitlichen Abstand von zwei aufeinanderfolgenden Pulsen kann man nun die Ausdehnung der Wechselwirkungszone abschätzen. Ab einer Repetitionsrate von 250 kHz, das entspricht einem Einzelpulsabstand von 4 μ s, sieht man keine komplette Transmission einzelner Laserpulse mehr und jeder Röntgenpuls ist vorhanden (vgl. Abbildung 5.9). Mit der Gasgeschwindigkeit von 800 m/s ergibt sich damit eine Größe der Wechselwirkungszone von ca. 3,2 mm. Dies ist wesentlich größer als die im Röntgenbereich gemessene Quellgröße (siehe 5.18). Allerdings sollte man erwarten, dass auch in den seitlichen Flanken des Laserpulses noch genügend Intensität ist, um ein Plasma zu erzeugen, ähnlich wie bei einem Luftdurchbruch. Dieser Bereich muss anschließend komplett ausgetauscht werden, um eine Absorption des nächsten Pulses zu gewährleisten. Die folgenden Messungen wurden deshalb bei einer Repetitionsrate von 125 kHz, d.h. 100 Pulsen/Burst, durchgeführt, um den Einfluss der Repetitionsrate auf die Emission gering zu halten. Bei die-

5.3. Einfluss der Repetitionsrate auf die Röntgenemission

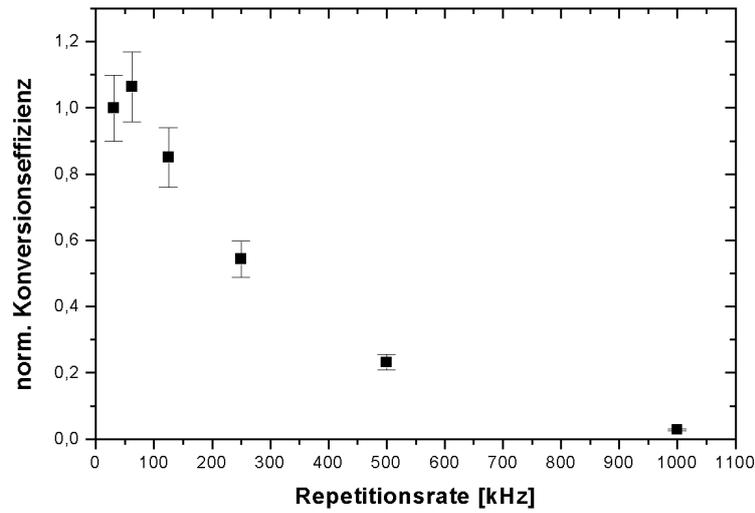


Abbildung 5.7.: Abhängigkeit der Konversionseffizienz bei 13,4 nm von der Repetitionsrate (Laserintensität $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$)

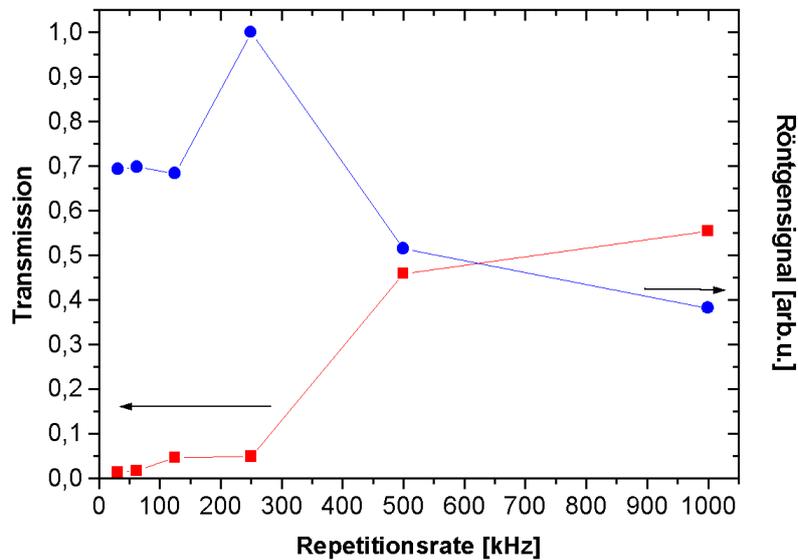


Abbildung 5.8.: Abhängigkeit der Transmission (Quadrate) und des Röntgensignals (Kreise) von der Repetitionsrate

ser Einstellung erhält man eine relativ geringe Puls-zu-Puls Schwankung ($2\sigma = 20\%$) des Röntgensignals (Abbildung 5.10), die ähnlich ist wie beim Wassertarget.

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

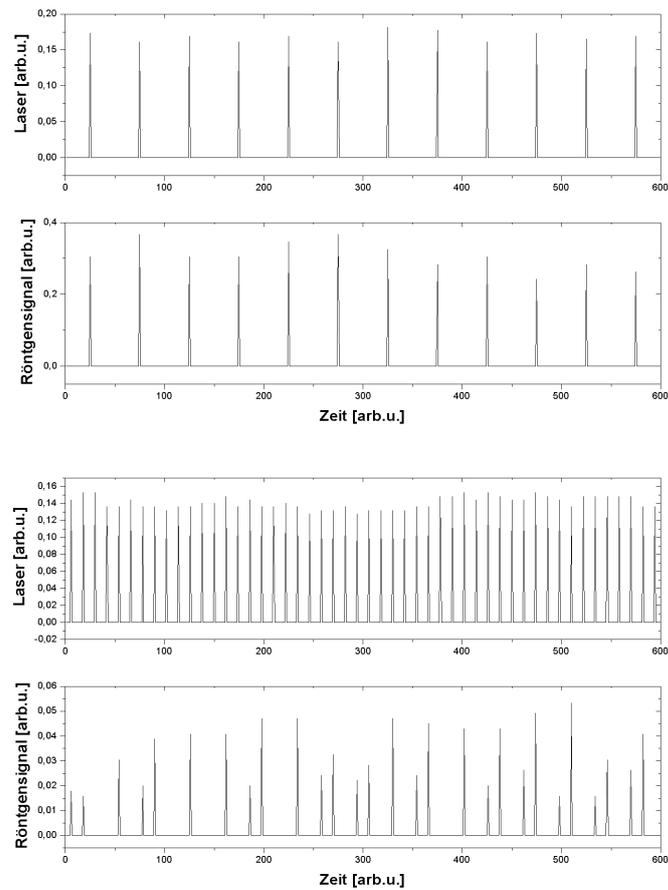


Abbildung 5.9.: Ausschnitte aus einem Laserburst und dem EUV-Signal, gewonnen aus den Messungen mit Diode 2 bzw. 1. Oben: 125 kHz (100 Pulse/Burst), Unten: 500 kHz (400 Pulse/Burst)

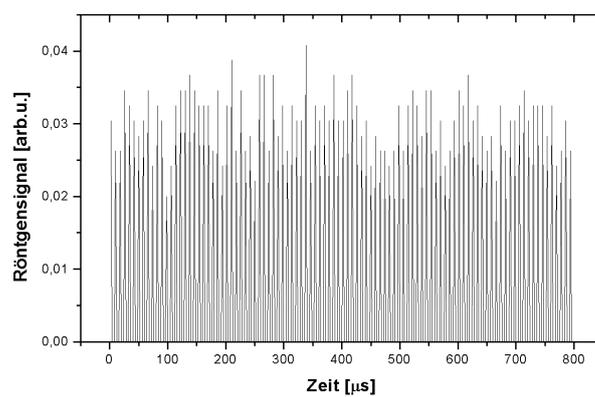


Abbildung 5.10.: EUV-Signal, ermittelt aus der Messung mit Diode 1, bei 125 kHz (100 Pulse/Burst)

5.4. Xenon-Spektren in Abhängigkeit vom Gasdruck

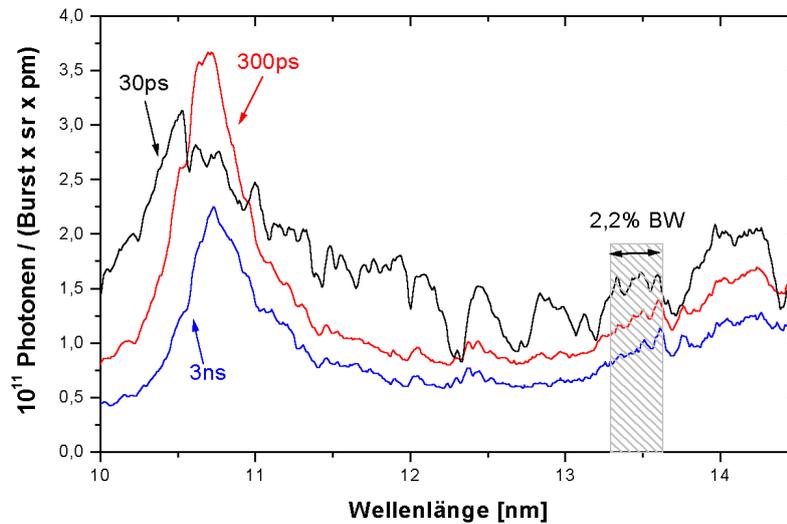


Abbildung 5.11.: Xenon-Spektren (30 bar Xe-Druck) bei einer Energie von 2,4 J/Burst und für die Pulsdauern 30 ps (schwarz), 300 ps (rot) und 3 ns (blau)

5.4. Xenon-Spektren in Abhängigkeit vom Gasdruck

Die Resultate der Streumessungen deuten die Bildung von größeren Clustern mit steigendem Gasdruck an. Gleichzeitig steigt aber auch die mittlere Atomdichte im Gaspuls. Um einen Einfluss der Clusterbildung auf die EUV-Emission des Targets zu untersuchen, wurden Spektren in Abhängigkeit des Drucks mit beiden Spektrographen gemessen. Dabei wurde bei gleicher Laserenergie die Pulsdauer variiert. Während die kürzeste Pulsdauer von 30 ps noch im Bereich der Expansionszeit der Cluster liegt (Gleichung (5.6)), sind die Pulsdauern 300 ps und 3 ns deutlich länger als diese Zeit. Ein Vergleich der Resultate soll Anhaltspunkte dafür liefern, inwieweit die Clusterung einen Einfluss auf die Emission hat.

Drei typische Xenon-Spektren, aufgenommen mit Tgs1 bei einer Laserenergie von 2,4 J/Burst, sind in Abbildung 5.11 dargestellt. Zu Erkennen ist ein breites Maximum bei 11 nm, der Bereich um 13 nm erreicht dagegen niedrigere Photonenzahlen. Eine Analyse der aufgenommenen Xenonspektren wird in einem separaten Abschnitt (5.8) am Ende dieses Kapitels durchgeführt.

Für die Auswertung der Konversionseffizienz wird, wie allgemein üblich, die Wellenlänge von 13,4 nm mit einer Bandbreite von 2,2% verwendet, da direkt bei 13 nm das Spektrum ein lokales Minimum aufweist. Ebenfalls analog zur Praxis in der Literatur erfolgt in diesem Kapitel die Angabe der Effizienz bei Xenon in einen Raumwinkel von 2π Steradian. Das Ergebnis der Auswertung der Messungen bei den verschiedenen Drücken findet sich in Abbildung 5.12 (eingezeichnet sind wieder die relativen Meßfehler).

Für alle Pulsdauern zeigt sich eine ähnliche Tendenz. Die Effizienz wächst für steigenden Druck zunächst an und erreicht ein Maximum bei Drücken ab 25 bar. Die Ursache für dieses Verhalten kann wieder in den Messungen zur Transmission der Laserstrahlung gefunden

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

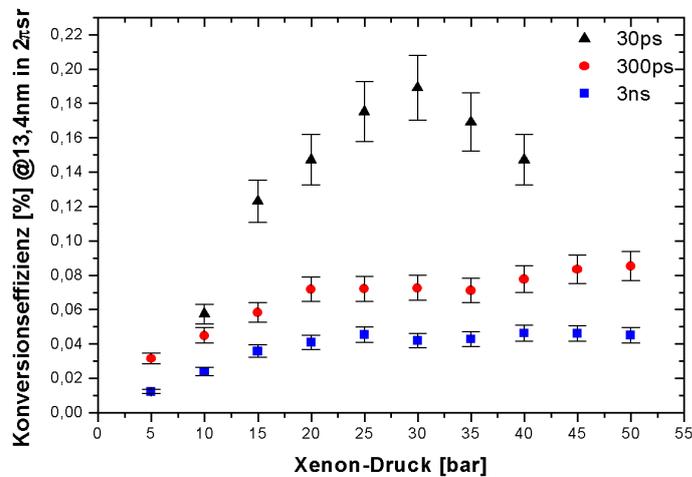


Abbildung 5.12.: Abhängigkeit der Konversionseffizienz vom Gasdruck bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate) Laserpulsdauer

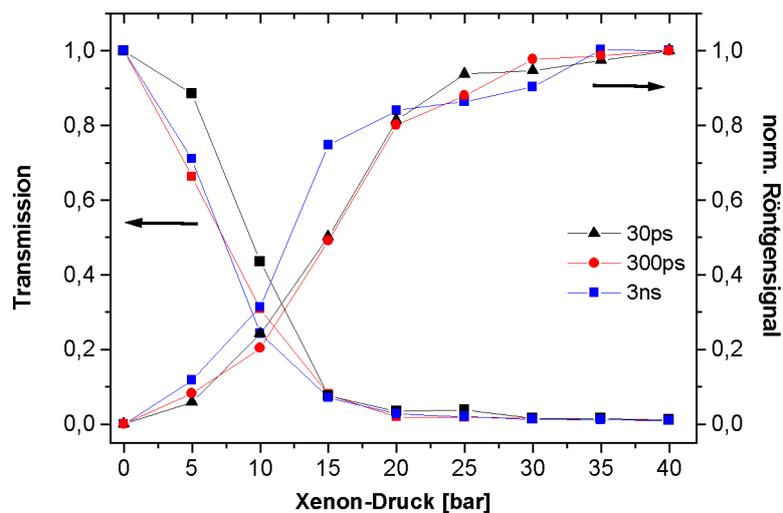


Abbildung 5.13.: Abhängigkeit der Transmission der Laserstrahlung und des Röntgensignals vom Gasdruck bei 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate) Laserpulsdauer und einer Laserenergie von 2,4 J/Burst

werden, die die Diode liefert (Abbildung 5.13). Dabei ist die Transmission direkt ein Maß für die Absorption des Targets, da der Anteil von rückwärts und seitlich gestreuter Laserstrahlung bei einem Clustertarget als gering angenommen werden kann [ZDP99]. Man erkennt bei allen drei Pulsdauern einen nahezu identischen Verlauf der Absorption mit dem Gasdruck. Ab 20 bar wird fast die gesamte Laserstrahlung absorbiert. Außerdem ist die Absorption unabhängig von der verwendeten Pulsdauer. Die integrale Röntgenemission, gemessen mit der

5.4. Xenon-Spektren in Abhängigkeit vom Gasdruck

Diode in der Targetkammer, zeigt ein passend zur Absorption umgekehrtes Verhalten. Allerdings erkennt man bei der EUV-Effizienz einen leichten Abfall bei hohen Gasdrücken ab 40 bar, besonders deutlich für eine Pulsdauer von 30 ps. Dies kann anhand des Diodensignals nicht nachzuvollzogen werden, auch bei hohen Drücken wird das gemessene Signal nicht geringer. Der Grund für diese Beobachtung liegt in der Absorption der EUV-Strahlung im Xe-Target, wie im folgenden Abschnitt beschrieben wird.

5.4.1. Absorption der EUV-Strahlung im Target

Bisher wurden nur die Ergebnisse der Spektren betrachtet, die mit dem Tgs1 aufgenommen wurden. Dieser Spektrograph hat einen direkten Blick auf die Wechselwirkungszone von Target und Laser. Da aber das Plasma im Gaspuls wahrscheinlich auf der dem Laser zugewandten Seite entsteht, muss die Strahlung, die im Tgs2 registriert wird, noch einen kurzen Weg im Xenongas zurücklegen und kann dort wieder absorbiert werden. Die hier angenommene Targetgeometrie, die durch experimentelle Messungen der Quellform unterstützt wird [MHK⁺00], ist zur Verdeutlichung in Abbildung 5.14 dargestellt.

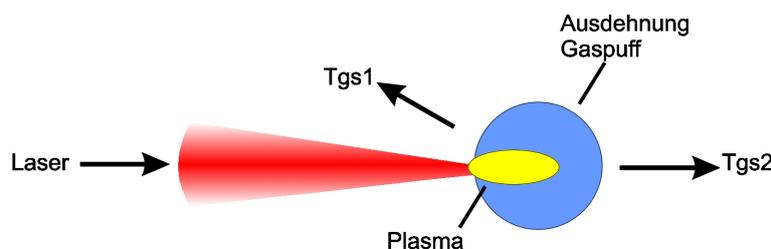


Abbildung 5.14.: Modell der Targetgeometrie

Die Spektren, die mit Tgs2 zeitgleich mit den in Abbildung 5.11 gezeigten Spektren aufgenommen wurden, zeigt Abbildung 5.15. Da es keine Kalibrierungsdaten für den Spektrographen gibt, sind die unkorrigierten Spektren für die drei Pulsdauern zu sehen. Im Bereich von 1–2 nm sind deutlich zwei Emissionsbanden zu erkennen. Für eine genauere Betrachtung des Spektrums sei wieder auf Abschnitt 5.8 verwiesen. Im Bereich von 3–6 nm besitzt das Zr-Filter eine hohe Absorption, daher kann diese Region in den Spektren nicht untersucht werden (vgl. Abbildung 3.3). Erst danach hat das Filter wieder bis 14 nm eine konstante Transmission. Nach dem breiten Emissionsmaximum um 7 nm ist im EUV-Bereich von 10–15 nm, der im Tgs1 deutlich zu erkennen war, fast kein Signal zu beobachten. Der Vergleich des Signals bei 7 nm und bei 13,4 nm in Abhängigkeit vom Gasdruck ist in Abbildung 5.16 dargestellt. Die Signale um 7 nm sind nahezu einen Faktor 10 größer als die bei 13,4 nm. Im Gegensatz zu den Ergebnissen des vorherigen Unterabschnitts werden die höchsten Werte für 13,4 nm bei niedrigen Drücken von 5–15 bar erreicht, obwohl die Laserstrahlung bei diesen Werten noch nicht optimal absorbiert werden kann. Die Ursache für dieses Verhalten ist in der Absorption der Strahlung in der Targetregion zu suchen. Diese Absorption nimmt mit steigendem Gasdruck zu, da die mittlere Gasdichte ebenfalls ansteigt. In Abbildung 5.17 ist die Transmission von Röntgenstrahlung durch 1 bar Xenon (293 K) auf einer Länge von 1 mm gezeigt. Besonders stark ist die Absorption gerade im Bereich von 10–15 nm, der für die Lithographie von Interesse ist. Dies ist in den Spektren deutlich zu erkennen, aufgrund

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

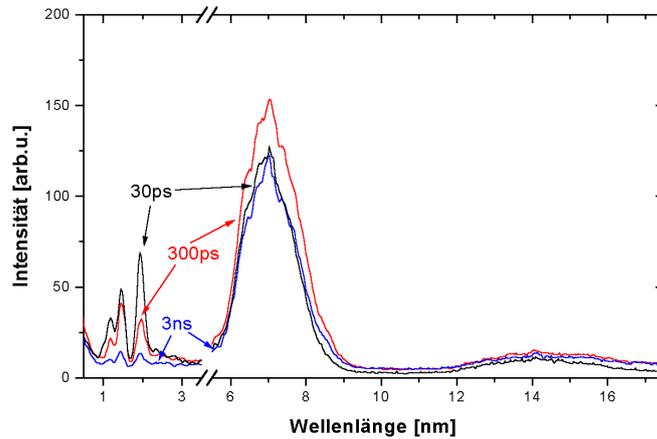


Abbildung 5.15.: Xenonspektren, aufgenommen mit Tgs2 bei 15 bar Gasdruck und 2,4J Energie/Burst. Gezeigt sind die Ergebnisse für die drei Pulsdauern 30 ps (schwarz), 300 ps (rot) und 3 ns (blau).

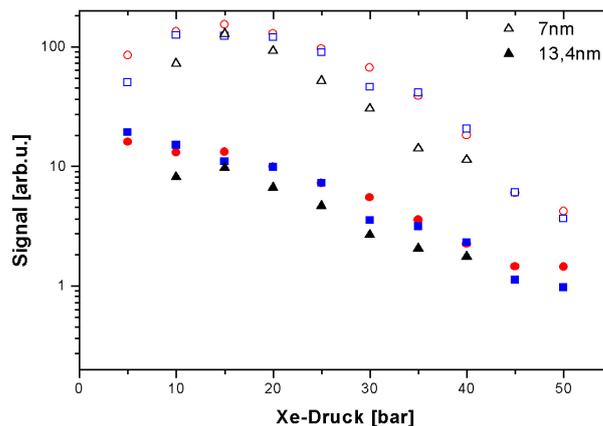


Abbildung 5.16.: Röntgensignal bei 7 nm (offene Symbole) und 13,4 nm (geschlossene Symbole) in Abhängigkeit vom Gasdruck für die drei Pulsdauern 30 ps (Dreiecke), 300 ps (Kreise) und 3 ns (Quadrate).

der Targetgeometrie ist die Emission der EUV-Strahlung anisotrop. Eine Quantifizierung der Anisotropie ist an dieser Stelle nicht möglich, dazu müsste eine genauere winkelaufgelöste Messung der EUV-Emission durchgeführt werden.

5.5. Messung der Quellgröße

In der 0. Ordnung des Tgs2 kann eine Messung der über alle Wellenlängen gemittelten Quellgröße in Richtung der Laserstrahlachse vorgenommen werden. Mit der Blendengröße von

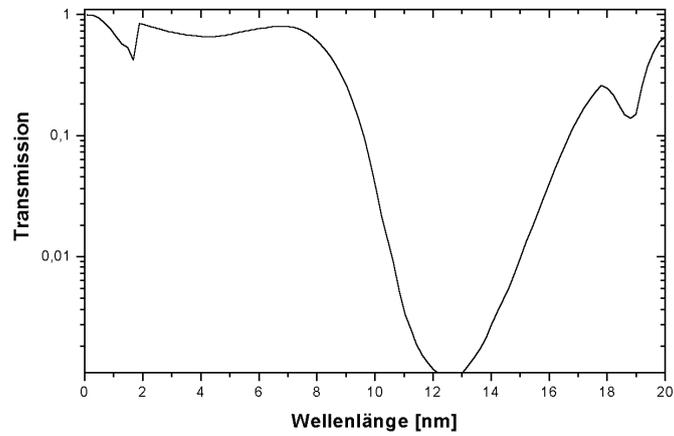


Abbildung 5.17.: Transmission von Röntgenstrahlung durch 1 bar Xenon auf 1 mm Länge bei einer Temperatur von 293 K [Gula]. Man beachte die logarithmische Skala.

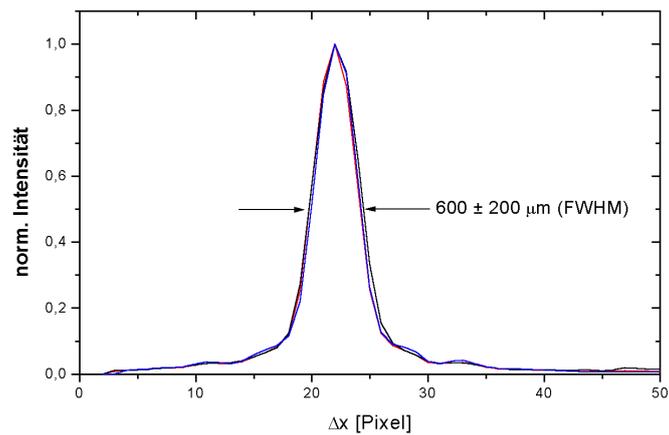


Abbildung 5.18.: Mit dem Tgs2 gemessene Quellgröße für 30 ps (schwarz), 300 ps (rot) und 3 ns (blau) Laserpulsdauer in Richtung der Laserstrahlachse

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

100 μm und der Geometrie des Aufbaus kann zwar keine hohe räumliche Auflösung erreicht werden, was aber für die Messung der zu erwartenden ausgedehnten Quelle nicht notwendig ist. Das Bild der Quelle ist symmetrisch in vertikaler und horizontaler Richtung. Es wird in dieser Ebene keine Abhängigkeit der Größe von der Pulsdauer gefunden. Für alle Pulsdauern ergibt sich eine Quelle mit einem Durchmesser von $600 \pm 200 \mu\text{m}$ (FWHM) (Abbildung 5.18). Ebenfalls hängt die Quellgröße nicht vom Gasdruck ab, allerdings spiegelt sich in der Intensität der 0. Ordnung bei den verschiedenen Drücken das eben beschriebene Absorptionsverhalten des Targets wider. Die höchste Intensität wird bei 15 bar erreicht, zu höheren Drücken hin fällt sie deutlich ab. Das Gebiet, das Röntgenstrahlung emittiert, in dem also eine hohe Elektronentemperatur herrscht, ist wesentlich kleiner als das eigentliche Wechselwirkungsgebiet von Laser und Target, dessen Größe in Abschnitt 5.3 ermittelt wurde.

5.6. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer

Wie eben dargestellt, stellt die Absorption der EUV-Strahlung besonders in Richtung des Laserstrahls ein großes Problem dar und führt dazu, dass in diese Richtung weniger Strahlung den Targetbereich durchdringen kann. In Rückwärtsrichtung (Tgs1) ist das Spektrum von diesem Effekt relativ unbeeinflusst, nur bei den höchsten Drücken kann man bei 30 ps Pulsdauer einen leichten Abfall der Effizienz beobachten (Abbildung 5.12). Die Untersuchungen zur Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Intensität und der Pulsdauer des Lasers sollen daher mit den im Tgs1 aufgenommenen Spektren vorgenommen werden. Die Angabe der Effizienz erfolgt dabei, wie schon erwähnt, für einen Raumwinkel von 2π Steradian, was auch vor dem Hintergrund der anisotropen Emission der Quelle sinnvoll erscheint.

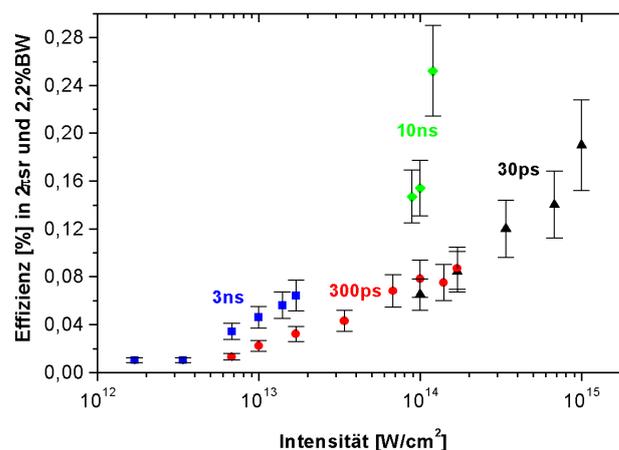


Abbildung 5.19.: Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Intensität und Pulsdauer bei 13,4 nm Wellenlänge in einer relativen Bandbreite von 2,2% (Dreiecke: 30 ps, 30 bar Xe-Druck; Kreise: 300 ps, 40 bar; Quadrate: 3 ns, 40 bar; Rauten: 10 ns, 12,5 bar)

5.6. Konversionseffizienz in Abhängigkeit von Intensität und Pulsdauer

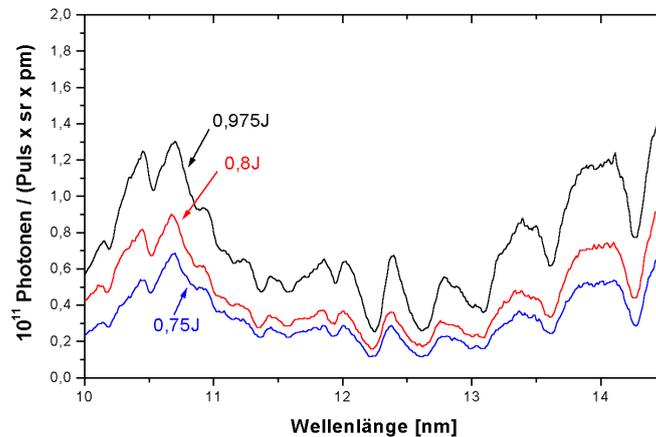


Abbildung 5.20.: EUV-Spektren, aufgenommen mit einem 10 ns-Laser und Einzelpulsenergien von 0,975 J (Intensität 10^{14} W/cm², schwarz), 0,8 J ($8 \cdot 10^{13}$ W/cm², rot) und 0,75 J ($7,6 \cdot 10^{13}$ W/cm², blau)

Um die Intensität über einen Bereich von 10^{11} – 10^{15} W/cm² variieren zu können, wurde wie bei den Experimenten mit dem Wassertarget bei jeder der drei Pulsdauern die Energie des Lasers verändert. Bei jeder Einstellung wurden anschließend Spektren aufgenommen. Drei Beispiele für typische Spektren sind bereits in Abbildung 5.11 gezeigt, und zwar für eine Laserenergie von 2,4 J/Burst. Damit ergibt sich für 30 ps Pulsdauer eine Intensität von 10^{15} W/cm² und für die anderen Pulsdauern ein um jeweils eine Größenordnung geringerer Wert. Je nach Intensität unterscheiden sich die Spektren deutlich. Gemeinsam zeigen sie ein breites Maximum um 11 nm. Allerdings wird die stärkste Emission in diesem Bereich bei der mittleren Intensität erreicht. Beim höchsten Wert fällt sie etwas ab, außerdem wird das Maximum breiter und verschiebt sich in Richtung kürzerer Wellenlängen. Die Effizienz wird im Bereich um 13,4 nm bestimmt. Während bei den zwei geringen Intensitäten das Spektrum hier relativ glatt erscheint, kann man bei 10^{15} W/cm² deutliche Linienbanden sehen. Außerdem werden die höchsten Photonenzahlen bei der höchsten Intensität erzielt. Eine genauere Analyse der Spektren ist schwierig und erfolgt deshalb in einem separaten Abschnitt (5.8).

Die komplette Messreihe zur Intensitäts- und Pulsdauervariation ist in Abbildung 5.19 gezeigt (eingezeichnet ist der relative Meßfehler). Für jede Pulsdauer wurde dabei die Auswertung bei dem Gasdruck vorgenommen, der die maximale Effizienz liefert. Das sind 30 bar bei 30 ps sowie 40 bar bei 300 ps und 3 ns. Man erkennt, dass die Effizienz mit der Intensität kontinuierlich steigt. Anscheinend kann mit dem Laser der optimale Intensitätsbereich nicht erreicht werden. Außerdem ist bei den Pulsdauern 3 ns und 300 ps und bei gleichen Intensitäten eine höhere Effizienz beim langen Laserpuls zu erkennen. Bei 30 ps und 300 ps Pulsdauer dagegen ist dies nicht so deutlich ausgeprägt. Wie beim Wassertarget sind somit die langen Laserpulse in diesem Intensitätsbereich zu bevorzugen. Dieses Ergebnis deutet darauf hin, dass die Stoßabsorption einen wesentlichen Beitrag zum Energieübertrag von Laserstrahlung auf das Plasma leistet. Eine höhere Intensität würde bei den 3 ns Laserpulsen höhere Konversionseffizienzen erzielen.

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

Um diese These zu überprüfen, wurden Messungen mit einem Nd:YAG-Laser (Spectra Pro-290) mit einer Maximalenergie von 0,975J vorgenommen. Der Laser besitzt eine Pulsdauer von 10 ns, und mit einer Fokussierung des Strahles auf 10 μm erreicht man eine Intensität von nahezu 10^{14} W/cm². Über dünne Glasplatten im Strahlengang konnte dabei eine Abschwächung der Laserenergie vorgenommen werden. Der Laser besitzt eine Repetitionsrate von 10 Hz, im Gegensatz zum burst-mode Laser trifft damit nur ein Puls einen Gaspuls, allerdings mit einer wesentlich höheren Einzelpulsenergie als beim burst-mode Laser. Um die Resultate vergleichen zu können, wurde die Fundamentale des Lasers bei $\lambda = 1064$ nm für die Messungen verwendet.

Die Spektren zu drei verschiedenen Laserenergien sind in Abbildung 5.20 dargestellt. Der Verlauf entspricht am ehesten dem Spektrum für eine Pulsdauer von 30 ps in Abbildung 5.11. Deutlich ist die Existenz von einzelnen Linienbanden zu sehen. Auch ist der Bereich um 11 nm gegenüber 13 nm nicht mehr deutlich überhöht, stattdessen erhält man bei langen Wellenlängen um 15 nm ein starkes Signal. Die Ermittlung der Konversionseffizienz erfolgte wieder bei 13,4 nm, das Ergebnis ist in Abbildung 5.19 bereits eingezeichnet worden. Obwohl die Pulsfolgebedingungen der Laser sehr unterschiedlich sind, ordnen sich die Werte relativ gut in das vorhandene Intensitätsschema ein. Wie zu erwarten erzielen höhere Intensitäten eine deutlich höhere Effizienz, und das trotz der langen Pulsdauer von 10 ns. Dabei liegen die Werte des ns-Lasers im Bereich der besten Werte der höchsten Intensitäten des burst-mode Lasers. Leider lässt sich aus dieser Messreihe nicht ableiten, ob man schon ein absolutes Maximum der Konversionseffizienz erreicht hat. Sowohl mit kürzeren Pulsen als auch mit höheren Intensitäten bei langen Pulsen ist eine höhere Effizienz nicht ausgeschlossen.

Die Experimente belegen eindeutig, dass auch mit ns-Pulsen hohe Konversionseffizienzen erzielt werden können. Um dies in einem physikalischen Modell verstehen zu können, kann man das von Ditmire et al. [DDR⁺96] vorgeschlagenen Nanoplasma-Modell für lange Pulsdauern (Abschnitt 5.1.1) anwenden. Aufgrund der großen Zahl von Atomen pro Cluster und der Tatsache, dass eher niedrig geladene Ionen bei langen Laserpulsen für die EUV-Emission verantwortlich sind (vgl. Abschnitt 5.8), sind die beiden anderen Modelle dafür nicht geeignet.

Im Nanoplasma-Modell werden die Cluster durch einen kurzen intensiven Laserpuls aufgeheizt und erfahren danach eine hydrodynamische Expansion, die insgesamt langsamer abläuft als eine Coulomb-Explosion. Für Xe-Cluster ist dies auch experimentell bestätigt worden [LDNS98]. Als charakteristische Größe für die Dynamik kann dabei die Expansionszeit τ_{ex} (Gleichung (5.6)) angesehen werden. Diese Größe ist u.a. von der Elektronentemperatur T_e abhängig. Die Autoren in [DDR⁺96] nehmen für ihre Anregungsintensitäten von 10^{17} W/cm² eine Temperatur von 1000 eV an und erhalten damit eine Expansionszeit von einigen ps. Dieses Szenario ist auf die hier beschriebenen Experimente nicht übertragbar, da mit niedrigeren Intensitäten und wesentlich längeren Pulsdauern gearbeitet wurde. Daher erscheinen eher Elektronentemperaturen unterhalb 100 eV realistisch. Daraus folgt direkt eine Expansionszeit von $\tau_{ex} \geq 20$ ps. Auch die Plasmaexpansionsgeschwindigkeit (Gleichung (2.20)) reduziert sich bei einer niedrigeren Elektronentemperatur deutlich. Für 100 eV ergibt sich eine Geschwindigkeit von $v_{exp} \approx 26800$ m/s. Damit kann man errechnen, dass das Nanoplasma in 1 ns eine Strecke von ca. 27 μm zurückliegt, was nur ein Faktor 2–3 größer ist als der eigentliche Laserfokus. Es zeigt sich, dass auch noch während eines ns-Pulses Targetmaterie im Bereich des Fokus vorhanden sein kann, wobei keine hohe lokale Atomdichte aufgrund

5.7. Experimente bei hohen Intensitäten und kurzen Pulsen

von Clustern mehr existiert. Allerdings ist in Wechselwirkungszone noch Materie mit einer gewissen mittleren Atomdichte vorhanden, so dass ein Energieübertrag von Laserstrahlung auf das Plasma über Stoßabsorption möglich ist. Dies erklärt auch die hohe Absorption des Targets bei langen Laserpulsen (vgl. Abbildung 5.8). Im Modell des Nanoplasmas kann man also die Wechselwirkung von ns-Lasern mit Clustern verstehen und prinzipiell auch eine hohe Laserabsorption und daher hohe Konversionseffizienzen erklären.

5.7. Experimente bei hohen Intensitäten und kurzen Pulsen

Die bisherigen Messungen am Clustertarget wurden mit Lasersystemen vorgenommen, deren Pulsdauer länger als die Expansionszeit der Cluster (Gleichung (5.6)) war. Nun sollen die Experimente beschrieben werden, bei denen kürzere Laserpulsdauern verwendet wurden¹. Gleichzeitig erreicht man mit kurzen Pulsen eine höhere Intensität, als sie mit dem burstmode Laser möglich ist und kommt damit eventuell in einen Bereich, der für eine Maximierung der Konversionseffizienz optimal ist.

5.7.1. Versuchsaufbau

Die Experimente wurden mit einem im wesentlichen identischen Aufbau wie in Abbildung 5.6 gezeigt durchgeführt, was die Vakuumkammer und die Anordnung der zwei Spektrographen relativ zum Laserstrahl betrifft. Allerdings wurde eine Clusterdüse verwendet, die einen wesentlichen Unterschied zu der bisher verwendeten Düse aufweist (Abbildung 5.21). Zwar ist der Expansionskanal identisch, doch beginnt dieser bei der nun benutzten Düse nicht direkt hinter der eigentlichen Öffnung des Magnetventils, die durch ein Poppet (vgl. Abbildung 5.21) geschlossen wird. Dies hat zur Folge, dass bei der Öffnung der Düse durch das Poppet das Gas zunächst in ein Stauvolumen gelangt und erst danach durch die kleine Öffnung des Düsenkanals strömen kann. Deshalb ist die mittlere Gasdichte im Puls bei identischem Druck geringer als für den Fall, in dem der Expansionskanal direkt an der Düsenöffnung beginnt. Diese Tatsache muss bei einem Vergleich der Experimente mit den in den letzten Abschnitten beschriebenen Ergebnissen berücksichtigt werden.

Die Bildung von Clustern wurde wiederum in einem Streuexperiment überprüft, dabei ist die Abhängigkeit des Streusignals vom Druck mit $I_S \sim p_0^{1,9}$ etwas anders als das in Abschnitt 5.2.2 beschriebene Ergebnis, was in der leicht modifizierte Düsenform begründet sein kann. Eine Bestimmung der Clustergröße liefert dagegen einen Wert in derselben Größenordnung [TASS⁺01].

Der für die Experimente verwendete Laser ist ein Ti:Sa-CPA Laser [KNS⁺97] mit einer Repetitionsrate von 10 Hz und einer Mitten-Wellenlänge von 800 nm. Die Pulsdauer betrug 50 fs bzw. 2 ps bei einer Pulsenergie von 200 mJ. Der Strahl mit einem Durchmesser von 60 mm wurde mit einem f/2,5 off-axis Parabolspiegel auf Intensitäten von $2 \cdot 10^{18}$ W/cm² (50 fs) bzw. $5 \cdot 10^{16}$ W/cm² (2 ps) fokussiert. Innerhalb eines Zeitfensters von ± 2 ps besaß

¹Die in diesem Abschnitt beschriebenen Experimente wurden in Zusammenarbeit mit Dr. M. Schnürer und Dr. S. Ter-Avetisyan durchgeführt, Beitrag des Autors waren die Messungen der Spektren mit dem hochauflösenden Spektrographen Tgs1.

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

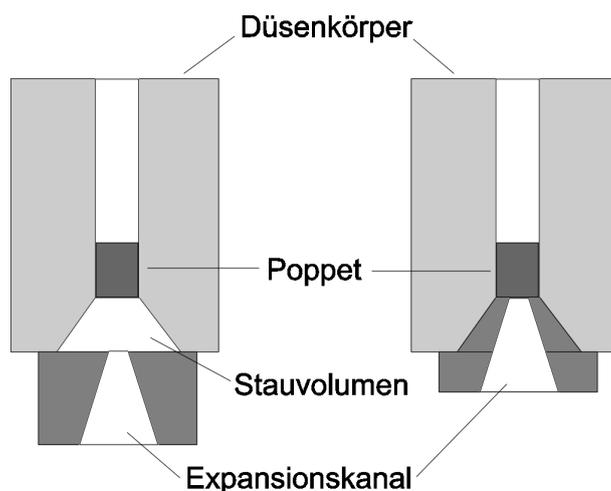


Abbildung 5.21.: Schematische Darstellung der unterschiedlichen Düsengeometrien. Links: Düse, die für die Experimente in Abschnitt 5.7 verwendet wurde. Rechts: Düse, die für die Experimente in den Abschnitten 5.3–5.6 verwendet wurde.

der Puls ein ns-Pedestal mit einer Intensität von weniger als 10^{13} W/cm². Wie bei dem 10 ns-Laser trifft ein Laserpuls genau einen Gaspuls.

5.7.2. Absorption der Laser- und EUV-Strahlung

Die Spektren, aufgenommen mit Tgs2, zeigen in einem weiten Bereich rund um die 0. Beugungsordnung eine starke Belichtung des CCD durch Laserlicht, besonders bei geringen Drücken. Diese wird verursacht durch nicht absorbierte Laserstrahlung, für dessen Wellenlänge das Zr-Filter noch einige Prozent Transmission besitzt. Aus diesem Signal können Werte für die Absorption der Laserstrahlung ermittelt werden, die Resultate sind in Abbildung 5.22 gezeigt. Der ps-Puls zeigt dabei ein Absorptionsverhalten, wie es auch beim burst-mode Laser zu sehen ist. Der fs-Puls dagegen zeigt bei niedrigen Drücken eine schwächere Absorption, erst ab 35 bar sind die Werte für beide Pulsdauern annähernd identisch. Es lässt sich feststellen, dass die Cluster für sehr kurze Pulse ein hoch absorbierendes Target darstellen. Damit entspricht das Resultat anderen in der Literatur beschriebenen Messungen zum Absorptionsverhalten von Clustern bei fs-Laserpulsen [DDR⁺96, ZDP99, MHK⁺00].

Auch in diesen Experimenten ist eine anisotrope Emission des Targets, bedingt durch die Absorption der EUV-Strahlung, zu beobachten. Als Beispiel sind in Abbildung 5.23 mit dem Tgs2 aufgenommene Spektren bei einer Pulsdauer von 50 fs gezeigt. Bei geringen Drücken ist ein starkes Signal im EUV-Bereich deutlich zu erkennen, sogar mit einer höheren Intensität als der Bereich um 7 nm. Erst mit steigendem Gasdruck kehrt sich dieses Verhalten um und man erhält Spektren ähnlich denen in Abbildung 5.15. An diesen Resultaten ist die eingehend erwähnte von der Düsengeometrie abhängige geringere mittlere Atomdichte bei gleichem Druck zu erkennen.

Die Emission von Xenon kann im Bereich 1–2 nm in den aufgenommenen Spektren bei niedrigen Drücken nicht untersucht werden, da die Überbelichtung des Chips durch den Laser weit über die 0. Ordnung bis in diese Region herausragt. Erst bei 35 bar Druck erkennt man

5.7. Experimente bei hohen Intensitäten und kurzen Pulsen

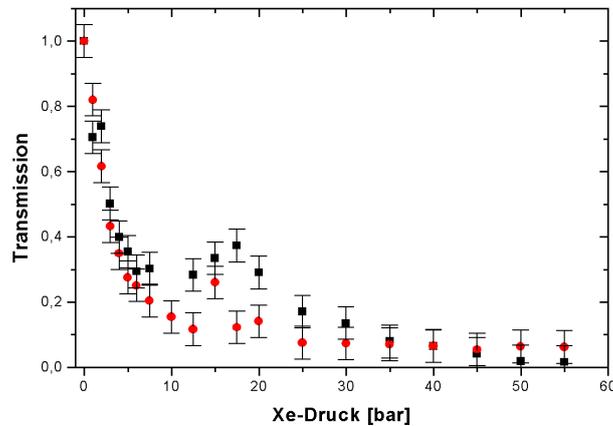


Abbildung 5.22.: Transmission der Laserstrahlung in Abhängigkeit vom Gasdruck bei 50 fs (Quadrate) und 2 ps (Kreise) Pulsdauer

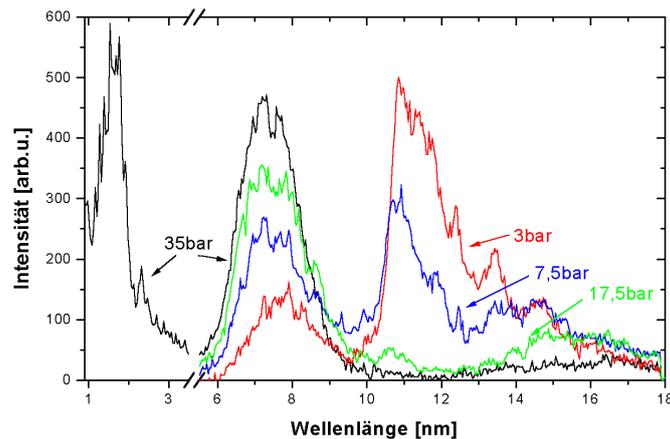


Abbildung 5.23.: Spektren, aufgenommen mit Tgs2 und 50 fs-Puls, bei verschiedenen Gasdrücken: 3 bar (rot), 7,5 bar (blau), 17,5 bar (grün), 35 bar (schwarz)

eine starke Emission in diesem Spektralbereich, die auf eine hohe Elektronentemperatur im Plasma hindeutet.

5.7.3. Xe-Spektren und Konversionseffizienzen

Die Ermittlung der Konversionseffizienzen erfolgte wieder mit dem Tgs1. Dazu wurden bei jeder Pulsdauer und für jeden Hintergrunddruck Spektren aufgenommen. Zwei typische Spektren sind in Abbildung 5.24 zu sehen, hierbei sind diejenigen ausgewählt worden, die bei den verschiedenen Pulsdauern die jeweils höchsten Photonenzahlen erzielen. In der Region um 13 nm erkennt man ähnliche Linienbanden wie bei den Spektren, die mit dem 10 ns Laser bzw. mit dem 30 ps burst-mode Laser aufgenommen wurden. Ein deutlicher Unterschied

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

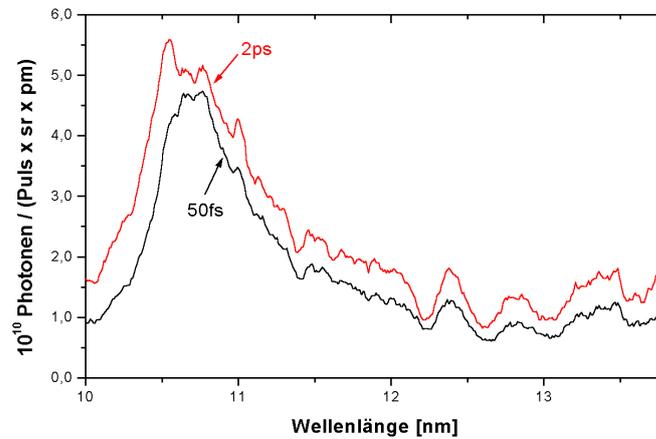


Abbildung 5.24.: Xenon-Spektren, aufgenommen mit Tgs1 bei 50 fs Pulsdauer und 15 bar Xe-Druck (schwarz) und 2 ps Pulsdauer und 20 bar Xe-Druck (rot)

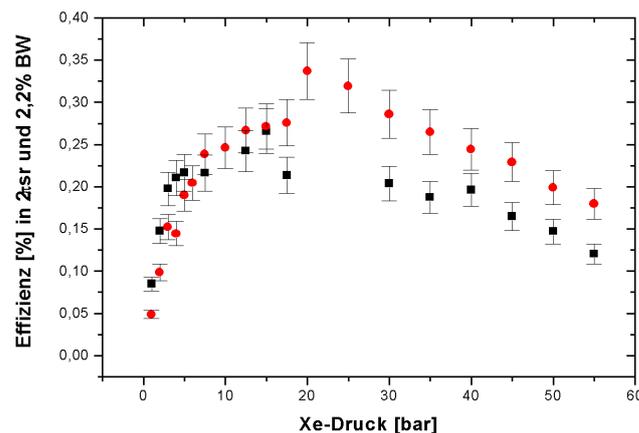


Abbildung 5.25.: Konversionseffizienzen bei 13,4 nm Wellenlänge in Abhängigkeit vom Xe-Gasdruck und 50 fs (Quadrate) und 2 ps (Kreise) Pulsdauer

findet sich aber im breiten Peak um 11 nm, der in diesem Spektrum wesentlich prominenter ist.

Für alle Drücke sind die Konversionseffizienzen bei 2 ps höher als bei 50 fs (Abbildung 5.25). Lässt sich dieses Verhalten bei niedrigen Drücken noch durch die unterschiedliche Absorption erklären, kann dies nicht für hohe Drücke gelten, da die Absorption hier annähernd gleich ist. Der Anstieg bei niedrigen Drücken spiegelt direkt das Absorptionsverhalten des Targets wieder. Erst bei Drücken ab 20 bar ist die Absorption maximal, daher werden auch erst hier die höchsten Effizienzen erreicht. Der Abfall der Effizienz bei höheren Drücken ist anhand der Absorptionswerte nicht zu erklären, vielmehr sorgt die Absorption der EUV-Strahlung im Target für dieses Verhalten [TASS⁺01].

5.7. Experimente bei hohen Intensitäten und kurzen Pulsen

Tabelle 5.2.: Maximal erreichte Konversionseffizienzen bei 13,4 nm Wellenlänge für verschiedene Laserparameter

Laserpulsdauer und Polarisation	Konversionseffizienz in %, $2\pi sr$ und 2,2% BW	Xe-Druck [bar]
50 fs, linear	0,2	15
2 ps, linear	0,3	20
50 fs, zirkular	0,5	10
2 ps, zirkular	0,8	15

Die besten Konversionseffizienzen, die mit 2 ps bzw. 50 fs Pulsdauer erreicht werden konnten, sind in Tabelle 5.7.3 zusammengefasst. Obwohl die Laserparameter extrem unterschiedlich sind, werden ähnliche Effizienzen erzielt wie bei dem 10 ns Einzelpuls und dem 30 ps Laserburst. Dies ist ein erstaunliches Resultat, da die Intensitäten in den einzelnen Experimenten unterschiedlich sind und sich dadurch die Wechselwirkungsprozesse der Laserstrahlung mit den Clustern ändert. Während bei den 10 ns Pulsen Stoßprozesse bei der Ionisation die entscheidende Rolle spielen (vgl. Abschnitt 5.6), kann das für die Dauer des fs-Pulses nicht mehr gelten. Hier erfolgt die Ionisation vor allen Dingen über Tunnelionisation (vgl. Abschnitt 2.3.1), erst danach spielen Stöße eine Rolle. Auch für den 2 ps Puls bei einer Intensität von $5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ sollte dies noch der Fall sein. Allerdings belegen Experimente, dass die Emissionsdauer der Röntgenstrahlung im weichen Spektralbereich aus Clustertargets im Bereich von einigen ns liegt, auch wenn die Anregung mit einem fs-Puls erfolgte [DDR⁺96, SMK02]. Im Modell des expandierenden Nanoplasmas bedeutet dies, dass auch nach dem Laserpuls während der Expansion die Elektronendichte nicht so weit abgesunken sein kann. Daher können nun wieder über Stöße der Elektronen mit den Ionen Zustände angeregt werden, die zu der EUV-Emission führen. Inwieweit die anfängliche Tunnelionisation das Emissionsverhalten des Plasmas beeinflusst oder ob es im wesentlichen durch Stoßprozesse während der Expansion dominiert wird, sollten die Experimente untersuchen, die im nächsten Abschnitt beschrieben sind.

5.7.4. Einfluss der Laserpolarisation auf die EUV-Emission

Der Startpunkt bei der Bildung eines Plasmas ist die Erzeugung von niedrig geladenen Ionen. Für die hier benutzten Intensitäten sollte dies über die stoßfreie Tunnelionisation erfolgen (Abschnitt 2.3.1), erst auf einer längeren Zeitskala (ps-ns) können Stöße eine Rolle spielen. Theoretische Berechnungen zeigen dabei einen Einfluss der Laserpolarisation auf die Emission des Plasmas, wenn zirkular statt linear polarisiertes Laserlicht benutzt wird [Per99]. Ursache hierfür ist die höhere kinetische Energie der Elektronen bei Tunnelionisation unter Verwendung von zirkular polarisiertem Licht. Bisher wurde dieser Mechanismus nur in Experimenten mit Gastargets nachgewiesen, die eine niedrige mittlere Atomdichte besaßen [PF97]. Durch die Verwendung einer niedrigen Dichte sollten dabei Stoßprozesse im Plasma minimiert werden. Ob dieser Effekt auch bei hohen Atomdichten ($> 10^{19} \text{ Atome/cm}^3$), wie sie im verwendeten Clustertarget zu finden sind, eine Rolle spielt, sollte experimentell über-

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

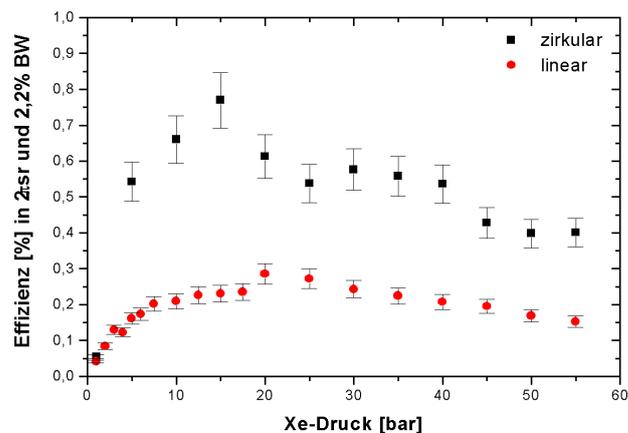


Abbildung 5.26.: Konversionseffizienz bei 13,4 nm in Abhängigkeit der Laserpolarisation (Pulsdauer 2 ps): Lineare Polarisation: Kreise, Zirkularpolarisation: Quadrate

prüft werden. In einer in der Literatur beschriebenen Messung an Argon-Clustern konnte dies nicht nachgewiesen werden [KKMT01].

Es wurde eine $\lambda/4$ -Platte in den Strahlengang gebracht, um zirkular polarisiertes Licht zu erzeugen. In Abbildung 5.26 ist die Konversionseffizienz für 13,4 nm bei 2 ps für die zwei unterschiedlichen Polarisationsrichtungen gezeigt. Für alle Hintergrunddrücke ist die Effizienz für zirkulare Polarisation 2–3 mal höher. Für den 50 fs-Puls ergibt sich ein ähnliches Bild. Die maximalen Effizienzwerte sind ebenfalls in die Tabelle 5.7.3 eingetragen. Die Änderung der Polarisation bietet also bei hohen Intensitäten die Möglichkeit, die Emission des Targets positiv zu beeinflussen. Die Experimente liefern einen deutlichen Hinweis darauf, dass die nachfolgenden Stoßionisationsprozesse während der Expansion die Emissionscharakteristik des Plasmas nicht gänzlich bestimmen. Eine Tunnelionisation muss bei der Wechselwirkung von Laserstrahlung und Clustern eine Rolle spielen.

5.8. Analyse der Xenonspektren

Eine Analyse der Xenonspektren ist insofern schwierig, da anders als z.B. beim Sauerstoff keine kompletten Listen aller Spektrallinien im untersuchten Bereich existieren. Außerdem wurde in den Messungen kein Wert auf eine hohe spektrale Auflösung gelegt, es ist also allenfalls eine Zuordnung von Linienbanden zu einer bestimmten Ionensorte möglich. Dies soll im folgenden auf der Basis von in der Literatur veröffentlichten Messungen und theoretischen Berechnungen erfolgen. Berücksichtigt werden muss dabei, dass die Arbeiten vor allem an Gasentladungsquellen und Tokamak-Plasmen gemacht wurden. Während man es bei den Entladungsquellen meist mit relativ geringen Atomdichten zu tun hat und die Plasmen eher kalt sind, entstehen in einem Tokamak sehr heiße Plasmen. Die Bedingungen im Laserplasma sind dazwischen anzusiedeln.

Der untersuchte Spektralbereich bei Xenon (1–15 nm) lässt sich grob in drei Gebiete einteilen, die im folgenden separat betrachtet werden sollen. Während die Regionen 1–2 nm

und 6–10 nm nur im Tgs2 beobachten werden konnten, erfolgt die Analyse des 10–15 nm Bereichs anhand der Messungen mit dem Tgs1.

Zunächst zur ersten Region zwischen 1–2 nm. Die Spektren, die mit dem burst-mode Laser aufgenommen wurden (Abbildung 5.15), sind vergleichbar mit einem anderen in der Literatur veröffentlichten Spektrum, das an einem Gaspuls unter ähnlichen Laserbedingungen (0,9 ns, 10^{14} W/cm²) registriert wurde [FBS⁺99]. Es sind zwei Banden zu erkennen, einmal um 1,4 nm und um 1,85 nm. In einer genaueren theoretischen Modellierung des hochaufgelösten Spektrums um 1,85 nm konnte gezeigt werden, dass die Emission von 25-fach bis 27-fach geladenem Xenon (Xe-XXVI–Xe-XXVIII, 3d-4p Übergänge) stammt [DBM⁺99]. Die Wellenlänge einzelner Übergänge stimmt dabei mit den Ergebnissen einer anderen Arbeit überein, die an einem Tokamak-Plasma durchgeführt wurde [WBALK85]. Für die Bande um 1,4 nm gibt es keine theoretischen Untersuchungen, doch ist in den Spektren auffällig, dass sich bei sinkenden Laserintensität die relative Intensität der beiden Banden zugunsten der kurzwelligen verschiebt. Das legt den Schluss nahe, dass die Emission von niedriger als 25-fach geladenen Ionen stammen muss. Unterstützt wird diese These durch ein Spektrum, aufgenommen an einem Xenon-Jet mit einer Laserintensität von kleiner 10^{12} W/cm² und einer Pulsdauer von 3ns [HRBH00]. Hier ist ebenfalls die 1,4 nm Bande deutlich zu erkennen, während bei 1,85 nm nur ein schwacher Ansatz einer Bande zu sehen ist.

Bei hohen Gasdrücken ist der 1–2 nm Bereich auch in den Spektren zu sehen, die mit einem 50 fs Puls hoher Intensität gemacht wurden (Abbildung 5.23). Eine breite Bande erstreckt sich über die gesamte Region, außerdem ist die Stärke der Emission wesentlich höher, was man z.B. an einem Vergleich mit dem 7 nm Bereich sieht. Aufgrund der höheren Laserintensität ist zu erwarten, dass die Emission von noch höher geladenen Ionensorten stammt. Tatsächlich existieren in diesem Bereich Übergänge von Xe-XXIX–Xe-XXXI [WBALK85], was diese Vermutung unterstützt.

Der Spektralbereich von 6–10 nm ist zwar auch in anderen Arbeiten vermessen worden [FBS⁺99, McG98], doch existieren keine weiteren Diskussionen oder Rechnungen über den Ursprung der Emission. Ausgehend von dem in [KS00] vorgeschlagenen Argument, dass die Relation zwischen der Energie der beteiligten Resonanzzustände und dem Ionisationspotential mindestens 1/2 sein sollte, kann die Emission 14–16-fach (Xe-XV–Xe-XVII) und höher geladenen Ionen zugeordnet werden.

Abschließend werden die Spektren von 10–15 nm betrachtet, aufgenommen mit Tgs1 (Abbildungen 5.11, 5.20 und 5.24). Ein wesentliches Merkmal der Spektren ist das Emissionsmaximum um 11 nm, das in Abhängigkeit von den Laserparametern stark oder weniger stark ausgeprägt ist. Zu längeren Wellenlängen schließt sich eine Region an, in dem das Spektrum relativ gleichmäßig ist, bei hohen Intensitäten erkennt man allerdings den Ansatz von Gruppen von Linienbanden. Aus der Literatur ist bekannt, dass in dieser Region eine Vielzahl von Ionensorten Emissionslinien haben. Bei dem in [KS00] gemessenen Spektrum einer Kapillarentladung wurden dabei Übergänge von Xe-VIII–Xe-XII identifiziert (4d-4f Übergänge). Dies sind die niedrigsten Ionensorten, die zu der Emission beitragen können. Untersuchungen an einem dichteren Tokamak-Plasma ordnen die dort beobachtete Emission auch höher geladenen Ionen (bis Xe-XXVI) zu [BDH⁺88]. Speziell wird ein in dieser Arbeit ebenfalls bei 11 nm beobachtetes Emissionsmaximum als Strahlung von Xe-XX–Xe-XXII Ionen identifiziert. Eine genaue Zuordnung der in dieser Arbeit gemessenen Spektren zu bestimmten Ionensorten um 10–15 nm ist schwierig, da keine Werte für die tatsächlichen Elektronendich-

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

ten im Plasma vorliegen. Die Emission bei 1,85 nm konnte aber klar Xe-XXVI–Xe-XXVIII zugeordnet werden, es existieren auch hochgeladene Ionensorten im Plasma, die prinzipiell zur Emission im EUV-Bereich beitragen können.

Ein besonderes Merkmal der Spektren ist die Tatsache, dass die Konversionseffizienz um 13,4 nm bei Intensitäten zwischen 10^{14} – 10^{18} W/cm² und den unterschiedlichsten Pulsdauern nahezu unverändert ist. Dies kann auf zwei Arten erklärt werden. Einmal ist es möglich, dass je nach Intensität höher oder niedriger geladene Ionensorten zur Emission beitragen und daher im Mittel ein annähernd gleiches Signal liefern. Es gibt aber auch noch eine zweite Erklärungsmöglichkeit. Untersuchungen zeigen, dass in diesem Spektralbereich das Plasma auch noch strahlt, nachdem die Cluster explodiert sind. Die Emissionsdauer liegt im Bereich von einigen Nanosekunden, selbst wenn mit einem fs-Laserpuls das Plasma erzeugt wurde [DDR⁺96, SMK02]. Ursache ist die geringe Elektronendichte während der Expansion, die zur Folge hat, dass die Energie der schnellen Elektronen durch eine geringere Stoßwahrscheinlichkeit insgesamt langsamer auf die Ionen übertragen werden kann. Im Gegensatz dazu ist die Emission eines Festkörpertargets mit hoher Dichte wesentlich kürzer (siehe folgendes Kapitel). Sollte die Emission hauptsächlich aus der Zeit nach der Clusterexplosion stammen, können also aufgrund der geringen Elektronendichte und damit geringen Elektronentemperatur nur die niedrigen Ionensorten zur Emission beitragen (d.h. Xe-VIII–Xe-XII). Außerdem spielt es nur noch eine untergeordnete Rolle, ob mit einem fs- oder ps-Puls angeregt wurde, lediglich die Anregung mit ns-Pulsen sollte noch einen Einfluss haben.

Anhand der EUV-Spektren lässt sich nicht abschließend klären, welche Vorstellung eher zutreffend ist und von welchen Ionensorten dementsprechend die Emission stammt. Es ist allerdings auffällig, dass sich das Spektrum des 10 ns Pulses (Abbildung 5.20) signifikant von den anderen Spektren unterscheidet. Das prominente Maximum bei 11 nm ist fast ganz verschwunden, dafür ist das Signal um 15 nm unverhältnismäßig stark. Im Vergleich dazu ist z.B. bei 50 fs (Abbildung 5.24) das Maximum bei 11 nm relativ schmal und deutlich ausgeprägt. Dies deutet darauf hin, dass die Bedingungen im Plasma durchaus unterschiedlich sein müssen. Betrachtet man die Wechselwirkung von Laser und Clustern im Modell des Nanoplasmas, ist die Dynamik dabei der entscheidende Faktor. Beim fs-Puls erfolgt die Aufheizung des Plasmas, bevor das Nanoplasma expandieren kann, es schließt sich eine Expansionsphase an, in der das Plasma abkühlt, aber immer noch strahlt. Bei den ns-Pulsen ist die Expansion wesentlich langsamer, außerdem wird dem Plasma auch noch während der Expansionsphase Laserenergie zugeführt. Unterschiede in den Spektren sollten daher nicht überraschend sein, es bedarf aber näheren theoretischen Untersuchung, um diese genau zu verstehen.

5.9. Abschließende Diskussion

Ziel der in diesem Kapitel beschriebenen Untersuchungen war es, die EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets zu untersuchen. Dabei konnte, anders als beim Wassertarget, kein eindeutig definierter Intensitätsbereich gefunden werden, in dem die Konversionseffizienz maximal wird. Mit einer Intensität von 10^{14} W/cm² und einem 10 ns Puls können hohe Effizienzen erreicht werden. Das Target liefert eine Konversionseffizienz bei 13,4 nm Wellenlänge von 0,3% (2π sr, 2,2% BW). Aber auch bei der Verwendung von 50 fs-Pulsen bei einer Intensität

von 10^{18} W/cm² erhält man annähernd gleiche Effizienzen. Dieses Resultat ist um so erstaunlicher, als dass die Experimente deutliche Hinweise darauf geben, dass die Vorgänge und Bedingungen im Plasma bei kurzen und langen Laserpulsen unterschiedlich sind. Während bei den ns-Pulsen Stoßprozesse wichtig sind, kann man bei den 2 ps und 50 fs Pulsen einen Einfluss der stoßfreien Tunnelionisation nachweisen. Die höchste im Rahmen der vorliegenden Arbeit gemessene Konversionseffizienz bei 13,4 nm Wellenlänge von 0,8% (2π sr, 2,2%BW) wurde daher mit einem zirkular polarisierten 2 ps-Laserpuls erzielt. Ein genaueres Verständnis der Resultate könnten aber nur theoretische Untersuchungen liefern, die vor allen Dingen die Dynamik der Vorgänge im Plasma berücksichtigen.

Die Effizienzwerte sollen nun wieder mit einer nach den Gleichungen (2.31) und (2.32) berechneten Effizienz verglichen werden. Für die Abschätzung von E_{min} ist bei Xenon die Bestimmung der notwendigen Ionisierungsenergie schwierig, da mehrere Ionensorten zur Emission in der untersuchten relativen spektralen Bandbreite von 2,2% bei 13,4 nm Wellenlänge beitragen können. Außerdem ist die Ermittlung der Energie aller möglichen Übergänge in den beteiligten Ionen nicht möglich, da es für Xenon keine tabellierten Spektrallinien gibt. Folgende Annahmen werden deshalb gemacht: die Emission stamme im EUV-Bereich vor allen Dingen von niedrigen Ionensorten Xe-VIII–Xe-XII, für die Berechnung der Ionisierungsenergie soll deshalb als Mittelwert der Wert von Xe-XI ($\sum E_i^{10} \approx 815$ eV) verwendet werden. Außerdem soll das 10-fach geladene Xe-Ion hauptsächlich im mit dem Tgs1 gemessenen Spektralbereich von 10–15 nm emittieren. Somit kann durch einen Vergleich der in der gesamten Region enthaltenen Energie und der bei 13,4 nm Wellenlänge in einer Bandbreite von 2,2% ein Wert von $\sum_{j=\alpha}^{\omega} \gamma_j h\nu_j \approx 1000$ eV ermittelt werden. Für die Plasmatemperatur der Ionen und Elektronen wird erneut $k_B T_j \approx 60$ eV angenommen. Mit diesen Modellannahmen folgt schließlich $E_{min} \approx 2800$ eV und eine theoretisch mögliche Konversionseffizienz von $\eta \approx 3,5\%$ für einen Raumwinkel von 4π sr und 2,2% relative spektrale Bandbreite bzw. $\eta \approx 2\%$ für einen Raumwinkel von 2π sr. Diese Werte stimmen mit einer in [LBJ⁺01] berechneten Abschätzung überein, allerdings bleiben in beiden Modellen weitere Faktoren wie z.B. die Güte der Einkopplung von Laserstrahlung in das Plasma unberücksichtigt. Man kann also wie beim Wasser von einer maximal realisierbaren Effizienz um 1% ausgehen. Die in dieser Arbeit gemessenen Effizienzwerte bei zirkularer Laserpolarisation sind daher nicht weit vom Optimum entfernt. Ein großes Problem bei einer Maximierung der Effizienz ist in jedem Fall die Absorption der entstehenden EUV-Strahlung im Target, insbesondere in Richtung des Laserstrahls. Dies ist auch in anderen Experimenten erkannt worden [KSB⁺01]. Daher geht die aktuelle Targetentwicklung dazu über, anstelle eines Cluster/Gastargets einen flüssigen Xenonjet als Targetsystem zu benutzen [HRBH00, HBHH00]. Auf diese Weise hofft man, die Absorption deutlich zu vermindern und in den Bereich der Konversionseffizienzen zu kommen, die mit gefrorenem Xenon als Target gemessen wurden [TRCR⁺01] und knapp über einem Prozent liegen. Eine weit über diesem Wert liegende Effizienz scheint aufgrund der Modellabschätzung und aller bisherigen experimentellen Ergebnisse unrealistisch zu sein.

Abschließend sollen die Konversionseffizienzen bei 13,4 nm Wellenlänge mit anderen in der Literatur veröffentlichten Werten bei Messungen an Xe-Cluster- oder Gaspuls-Targets verglichen werden (siehe auch Abbildung 5.27). Es handelt sich dabei um folgende Arbeiten:

- Kubiak et al.: Cluster-(Tröpfchen-)Target, Laser < 10 ns Pulsdauer, Intensität $I = 10^{12}$ W/cm², Effizienz $\eta = 0,56\%$ (2π sr) [KBKS99]

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

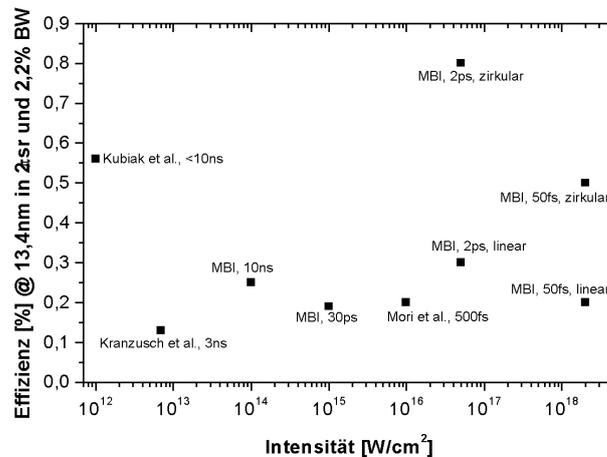


Abbildung 5.27.: Vergleich der in der Literatur veröffentlichten Konversionseffizienzen von Xe-Gaspuls/Clustertargets für 13,4 nm Wellenlänge

- Mori et al.: Clustertarget, Laser 500 fs Pulsdauer, Intensität $I \approx 10^{16} \text{ W/cm}^2$, Effizienz $\eta = 0,56\%$ ($2\pi\text{sr}$) [MST⁺01]
- Kranzusch et al.: Gaspulstarget, Laser 3 ns Pulsdauer, Energie 24 mJ, Intensität $I = 7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$, Effizienz $\eta = 0,13\%$ ($2\pi\text{sr}$) [KM01]

Die Resultate in der ersten und dritten Arbeit wurden mit langen Laserpulsdauern im ns-Bereich, in der zweiten Arbeit mit fs-Pulsen erzielt. In letzterer Veröffentlichung ist dabei neben fs-Laserpulsen, die entsprechend den Laserparametern Effizienzen wie am MBI erzielten, eine Messung mit einem ns-Laser vorgenommen worden. Daraus resultierten verglichen mit den fs-Pulsen deutlich geringere Effizienzen. Als Ursache sahen die Autoren die im Vergleich zu den Experimenten in [KBKS99] relativ niedrige mittlere Atomdichte in ihrem Target an ($5 \cdot 10^{18} \text{ Atome/cm}^3$). Die Autoren schlossen daraus weiter, dass für Laserpulse kürzer als die Clusterexpansionszeit die Existenz von Clustern im Gaspuls eine Rolle spielt. Ein effektiver Energieübertrag vom Laser auf die Cluster kann nur in der Zeit erfolgen, in dem die Cluster noch zusammenhalten. Die lokale Dichte ist also entscheidend, nicht die mittlere Dichte. Für lange Pulsdauern dagegen ist auch die mittlere Atomdichte für die Emissionscharakteristik des Plasmas ausschlaggebend, da Stoßprozesse während der Clusterexpansion an Bedeutung gewinnen. Diese Argumentation ist konform mit den in dieser Arbeit gemessenen Resultaten, da auch hier die mittlere Atomdichte im Target hoch war. Ob allerdings lediglich die hohe Dichte im Target für eine hohe Konversionseffizienz bei Verwendung von ns-Pulsen notwendig ist oder auch die Anwesenheit von Clustern von Bedeutung ist, kann nicht abschließend beantwortet werden. Hierzu bedarf es weiterer Messungen, bei denen man gezielt die Bildung von Clustern verhindern kann, ohne die mittlere Atomdichte zu verändern.

Um die Bildung von Clustern zu ermöglichen, ist ein Puls-Pause Betrieb der Düse notwendig. So handelt es sich bei dem in [KBKS99] mit dem Wort Clustertarget beschriebenen Target eher um eine kontinuierlichen Strom von Xenongas oder Mikrotröpfchen (siehe auch Kommentar in [PAF⁺00]), da Laser mit kHz-Repetitionsrate verwendet wurden und

von einem kontinuierlichen Strom von Targetmaterial die Rede ist. Die an diesem Target gemessenen Effizienzen bei Verwendung von relativ niedrigen Intensitäten im Bereich um 10^{12} W/cm² konnten allerdings in den Experimenten am MBI nicht bestätigt werden. Hier wurden für ähnlich hohe Effizienzen Intensitäten von 10^{14} W/cm² oder darüber benötigt.

Verglichen mit allen anderen Experimenten erzielte das Gastarget in [KM01] die geringste Effizienz. Allerdings ist der Unterschied zu den anderen Messungen nicht allzu groß, so dass die Ursache dafür in den verwendeten Versuchsparametern zu suchen ist und wohl nicht prinzipieller Natur ist. Es ist nämlich unklar, inwieweit auch sogenannte Xe-Gaspuffs Cluster enthalten, da der Prozess der Clusterbildung bei Xenon sehr stark ist. Ein Einfluss von Clustern auf die Emission kann daher nicht ausgeschlossen werden.

5. Untersuchung der EUV-Emission eines Xenon-Cluster-Targets

6. Aufbau einer Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Spektralbereich des Wasserfensters

In der Absorptionsspektroskopie durchstrahlt man eine Probe mit elektromagnetischer Strahlung $I_0(\lambda)$ (kontinuierliches Spektrum) und misst das durch die Probe transmittierte Spektrum $I(\lambda)$. Setzt man die transmittierte Strahlung ins Verhältnis zur einfallenden Strahlung und bildet den dekadischen Logarithmus [HW94]

$$\log \left(\frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)} \right) = OD(\lambda) = \epsilon(\lambda)Cd \quad , \quad (6.1)$$

so erhält man die optischen Dichte OD , die gegeben ist durch das Produkt aus molarem Exkinktionskoeffizienten ϵ , Probenkonzentration C und der Dicke der Probe d . Betrachtet man im Röntgenbereich dabei speziell den Bereich einer Absorptionskante der in der Probe enthaltenen Elemente, spricht man von NEXAFS-Spektroskopie (engl. near edge x-ray absorption fine structure) [Stö96]. Als Absorptionskante bezeichnet man den Wellenlängenbereich, in dem die Energie der Strahlung gerade groß genug ist, um ein Elektron aus einer inneren Schale eines Atoms herauszulösen. Weit vor und hinter der Kante ist die Absorption der Röntgenstrahlung ähnlich, lediglich im Bereich der Kanten ändert sich das Absorptionsverhalten drastisch, die Absorption steigt stark an (daher auch der Begriff Kante). Dieser Bereich von ca. 50 eV im Spektrum besitzt eine detaillierte Struktur, aus der man Informationen über Bindungszustände von Atomen in einem Molekül gewinnen kann. Daneben existiert noch die EXAFS-Spektroskopie (engl. extended x-ray absorption fine structure) [TJ81], die zur Analyse einen spektral breiteren Bereich ($h\nu \leq 1000$ eV) direkt hinter der Kante verwendet.

Die NEXAFS-Spektroskopie ist zunächst eine statische Methode, die sich aber mittels eines Pump-Probe-Schemas um die Zeitauflösung erweitern lässt [Kle91, IW95]. Die Probe wird dabei mit einem Pumpstrahl angeregt, in der Regel im Bereich sichtbarer Strahlung. Erst kurz danach misst man das Röntgen-Absorptionsspektrum (Probe). Durch eine Variation des Zeitabstandes zwischen Pump- und Probestrahl erhält man somit ein zeitabhängiges NEXAFS-Spektrum [NGL⁺99, RWJ⁺96, SLB⁺01], das Informationen über die durch den Pumpstrahl angeregten Prozesse und deren Zeitverhalten enthält.

Bisher wurde NEXAFS-Spektroskopie vor allem an Synchrotronstrahlungsquellen betrieben [Stö96], allerdings vorwiegend im statischen Fall, da eine Synchronisierung mit einem gepulsten externen Laser schwierig und die Bunchstruktur der Synchrotronstrahlung ungünstig ist. Daneben ist verfügbare Strahlzeit an diesen Quellen stark begrenzt und teuer. Aus diesem Grunde erscheint es nützlich, eine Quelle für ein Laborröntgenspektrometer zu entwickeln. Ein laserinduziertes Plasma bietet sich dabei besonders an, da man für eine Pump-Probe-Anordnung gepulste Quellen mit einer kurzen Pulsdauer benötigt. Zudem ist die Synchronisation einfach, wenn man für den Probepuls und den Laserpuls zur Erzeugung

6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster

des Plasmas denselben Laser benutzt. In diesem Kapitel wird der Aufbau, die Charakterisierung und Optimierung einer Laborquelle für zeitaufgelöste Röntgenabsorptionsexperimente beschrieben und die Eignung für ihren Zweck gezeigt¹. Als Wellenlängenbereich wurde das sogenannte Wasserfenster [Wol52], das ist also der Bereich zwischen den K-Kanten von Sauerstoff ($\lambda = 2,34$ nm) und Kohlenstoff ($\lambda = 4,38$ nm), gewählt. Besonderes Augenmerk wurde zunächst auf die Kohlenstoff-K-Kante gelegt, um organische Moleküle untersuchen zu können.

6.1. Verwendetes Lasersystem

Aus dem vorherigen Abschnitt lassen sich die Anforderungen an das Lasersystem ableiten. Um zeitaufgelöste Messungen durchführen zu können, sollte der Laser eine Pulsdauer von maximal einigen Pikosekunden besitzen, da eine Dauer der Röntgenemission im Pikosekundenbereich zu erwarten ist. Eine möglichst kurze Pulsdauer ist auch vorteilhaft im Hinblick auf die Größe der Plasmaquelle. Schließlich ist eine hohe mittlere Laserleistung die Voraussetzung für hohe Photonenzahlen im Röntgenbereich, die Intensität sollte nach Gleichung (2.25) aufgrund des gewünschten Spektralbereichs des Wasserfensters mindestens 10^{13} W/cm² betragen.

Die Wahl fiel deshalb auf das schon in Kapitel 4.3.1 beschriebene Nd:YLF burst-mode Lasersystem, das zum Zeitpunkt der hier beschriebenen Messungen noch ohne Booster-Verstärker und lediglich mit den vier Hauptverstärkern ausgestattet war. Der Laser wurde mit der kürzest möglichen Pulsdauer von 25 ps betrieben, die Maximalenergie pro Burst betrug 500 mJ. Damit kommt man im Einzelpuls auf die nötigen Intensitäten bei einer Fokussierung des Laserstrahls auf 10 μ m. Die mittlere Leistung betrug so maximal 1 W bei einer Repetitionsrate von 2 Hz.

6.2. Messung der Photonenzahlen in Abhängigkeit des Targetmaterials und der Laserintensität

Für die Wahl des Targetmaterials muss berücksichtigt werden, dass ein kontinuierliches bzw. quasi-kontinuierliches Spektrum erzeugt werden soll. Dies erfordert die Verwendung eines Materials mit einer hohen Kernladungszahl Z (vgl. Abschnitt 2.5.4). Da die meisten dieser Elemente in fester Form vorliegen, wurde die Verwendung eines Festkörpertargets bevorzugt. Bei den Materialien fiel die Wahl auf Gold, Kupfer, Eisen und Blei. Zum Vergleich wurden auch Messung mit Targets aus Polyethylen (PE, $(C_2H_4)_n$), Polyethylen-Teraphtalat (PET, $(C_{10}H_8O_4)_n$) und Polyvinyl-Chlorid (PVC, $(C_2H_3Cl)_n$) durchgeführt. Die in ihnen enthaltenen Elemente Kohlenstoff und Sauerstoff haben ein relativ geringes Z und sind deshalb im Wasserfenster Linienstrahler.

¹Die Experimente wurden zusammen und zu gleichen Teilen mit Dipl.Phys. M. Beck durchgeführt (vgl. [Bec02])

6.2.1. Versuchsaufbau und Durchführung

Die Targets lagen in Form kleiner Zylinder vor. Mittels eines Elektromotors wurde der Zylinder schnell um die eigene Achse gedreht und mit einem zweiten Motor langsam entlang der Achse bewegt, um bei den hohen Repetitionsraten des burst-mode Lasers bei jedem Schuss eine andere Stelle auf dem Target zu treffen. Dazu wurde eine spezielle Targethalterung konstruiert [Bec02]. Die Halterung befand sich in einer Targetkammer, die mit einer Turbomolekularpumpe auf weniger als $5 \cdot 10^{-4}$ mbar evakuiert wurde. Eine plankonvexe Linse mit einer Brennweite von $f = 50$ mm, die gleichzeitig als Eintrittsfenster in die Vakuumkammer diente, fokussierte den Laser auf das Target unter einem 90° Winkel und mit einer Spotgröße von $10 \mu\text{m}$ (FWHM). Je nach Anzahl der Pulse pro Burst (25–400 Pulse) konnten damit Intensitäten zwischen $4 \cdot 10^{13}$ und $8 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 erreicht werden. Eine Photodiode mit 200 nm Aluminiumfilter wurde zur Echtzeit-Kontrolle der Röntgenemission und zur Optimierung der Fokussierung des Lasers auf das Target verwendet. In Abbildung 6.1 kann man erkennen, dass die Röntgenpulse sehr gleichmäßig den Laserpulsen folgen.

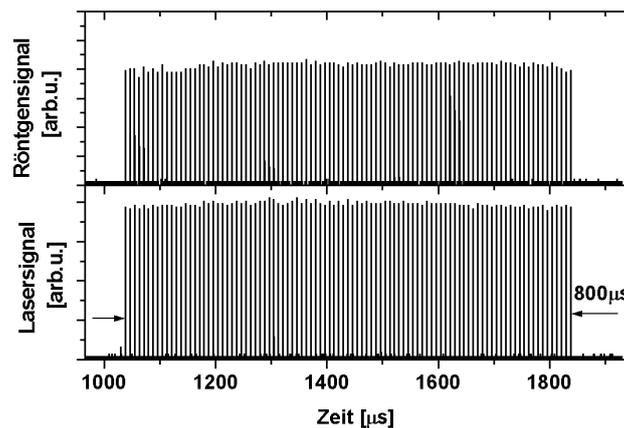


Abbildung 6.1.: Röntgenemission (oben) des Plasmas bei einem Festkörpertarget, aufgenommen mit einer Photodiode im Vergleich zum Lasersignal (unten)

Zur Messung der Photonenzahlen wurde der Spalt-Gitter-Spektrograph verwendet, zur Streulichtunterdrückung ebenfalls ein 200 nm Aluminiumfilter. Der Abstand Quelle-Gitter betrug 900 mm, der Abstand Gitter-Detektor 450 mm. Damit war ein Bereich von ca. 3,5 nm auf dem CCD-Detektor sichtbar bei einem spektralen Auflösungsvermögen an der Kohlenstoff-K-Kante von $\lambda/\Delta\lambda \approx 193$. Es stellte sich für die meisten Materialien heraus, dass bei einem so großen Abstand von Quelle und Gitter das entstehende Debris nicht mehr zu einer Zerstörung des Gitters führt. Bei Blei und Eisen allerdings war das Debris so stark, dass keine definierten Messungen durchgeführt werden konnten und so diese Materialien nicht weiter untersucht wurden. Abbildung 6.2 zeigt den kompletten Versuchsaufbau.

Es wurden zwei Versuchsreihen durchgeführt. In der ersten Reihe wurde bei gleicher Energie pro Burst die Anzahl der Pulse pro Burst verändert (25–400 Pulse). Man erhält eine

6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster

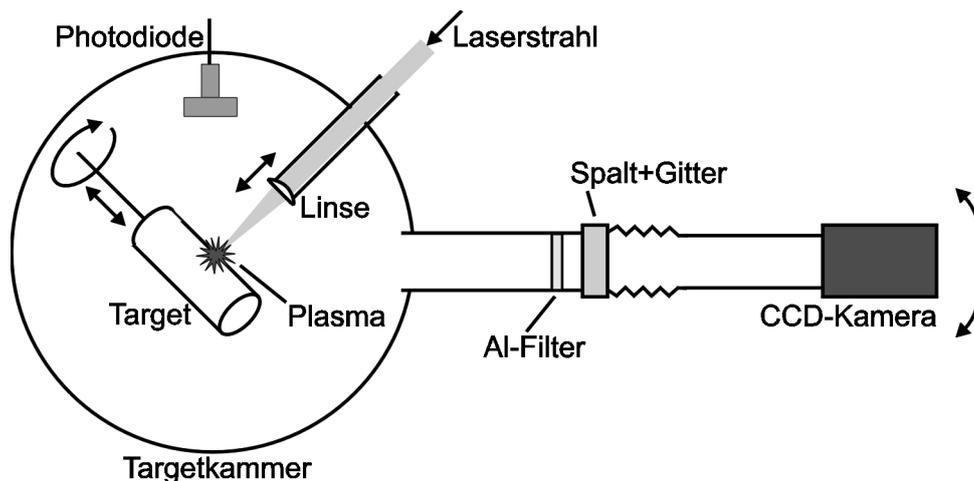


Abbildung 6.2.: Versuchsaufbau zur Messung absoluter Photonenzahlen

Variation der Pulsintensität und die Photonenzahlen sind ein direktes Maß für die Konversionseffizienz. In einer zweiten Reihe wurde für jede Repetitionsrate die jeweils maximal mögliche Burstenergie eingestellt, um die Photonenausbeute zu maximieren.

6.2.2. Ergebnisse und Diskussion

In Abbildung 6.3 sind zum Vergleich die Emissionsspektren der untersuchten Targetmaterialien dargestellt. Die Spektren von PE und PET werden dominiert von Linienstrahlung bei einem sehr geringen Untergrund. Die Linien gehören zu Übergängen von Helium-ähnlichem (C-V) und Wasserstoff-ähnlichem (C-VI) Kohlenstoff. Da PET zusätzlich noch Sauerstoff enthält, finden sich im Spektrum noch Linien von Helium-ähnlichem Sauerstoff (O-VII). Das PVC-Spektrum enthält wiederum die Kohlenstofflinien, aber auch Chlor weist in diesem Bereich eine Reihe von Übergängen aus niedrigen Ionisierungsstufen auf (Cl-IX, Cl-XI, Cl-XIIIV). Dies führt zu einer Anhebung des Untergrundes und man kann den Ansatz eines quasi-kontinuierlichen Spektrums erkennen.

Dieser Trend, verursacht durch ein höheres Z von Chlor gegenüber Kohlenstoff, setzt sich bei den Metalltargets fort. Das Kupferspektrum zeigt einen starken Untergrund, der von einigen Linien überragt wird. Diese Linien gehören zum Großteil zu den Ionisierungsstufen Cu-XIX und Cu-XVII. Bei Gold schließlich, dass die höchste Kernladungszahl Z aller untersuchten Materialien besitzt, ist die Linienstruktur fast ganz zugunsten eines homogenen Untergrundes verschwunden. Auch die Röntgenintensität ist bei Gold höher als bei Kupfer. Dennoch wurde die Entscheidung bei der Wahl des Targetmaterials für das Spektrometer zu Gunsten des Kupfertargets getroffen, da dieses Target wesentlich leichter und kostengünstiger herzustellen ist. Zudem sind bei Kupfer gerade im Bereich um die Kohlenstoff-K-Kante keine Linien vorhanden, was für das Aufnehmen von Absorptionsspektren ein großer Vorteil ist. Auf der anderen Seite können die an anderer Stelle vorhandenen und identifizierten Linien dazu dienen, eine Wellenlängeneichung der Spektren durchzuführen.

Die zwei Messreihen zur genaueren Untersuchung der Röntgenemission in Abhängigkeit der Laserparameter sowie die Untersuchungen zur Quellgröße und Röntgenpulsdauer

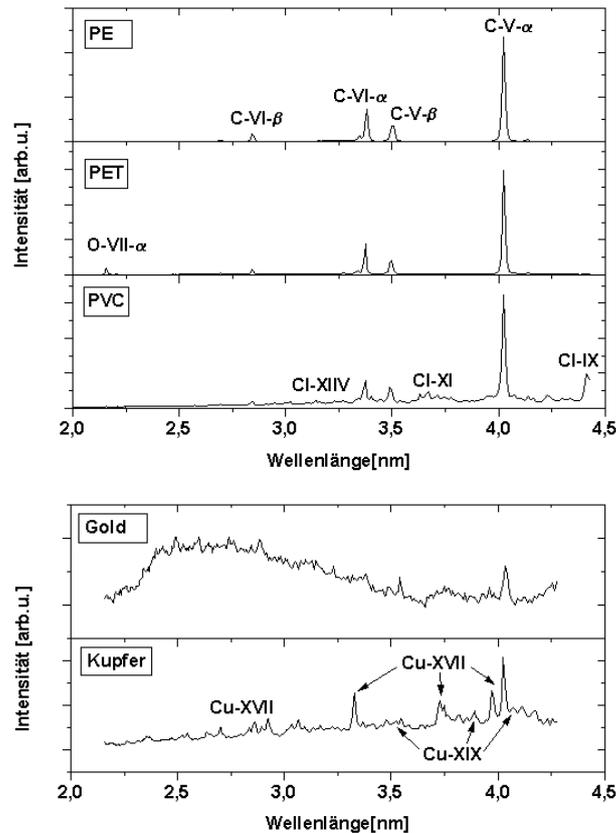


Abbildung 6.3.: Normierte Emissionsspektren der untersuchten Targetmaterialien

wurden nur am Kupfertarget und zum Vergleich mit einem Linienstrahler am PET-Target durchgeführt. Zunächst betrachtet werden die Messungen zur Untersuchung der Intensitätsabhängigkeit der Emission, dazu wurde die Anzahl der Pulse pro Burst bei fester mittlerer Leistung variiert. Beim PET-Target wurden die intensivsten Linien der beteiligten Ionen, also C-V- α und C-VI- α ausgesucht, eine Integration über die Linie liefert direkt einen Wert für eine relative Konversionseffizienz. Beim Kupfer wurde bei einer Wellenlänge von 4,4 nm ein Spektralbereich mit einer Bandbreite von 1% für die Integration verwendet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.4a) dargestellt. Bei PET erkennt man, dass die Konversionseffizienz für beide Linien mit der Intensität ansteigt. Bei der C-V- α -Linie scheint die Effizienz aber in eine Sättigung zu laufen, offenbar herrscht im Plasma eine Temperatur, die für eine optimale Erzeugung der zugehörigen Ionensorte ausreichend ist. Für die C-VI Stufe ist dagegen noch kein optimaler Wert erreicht, eine Steigerung der Intensität würde zu einer höheren Effizienz in der C-VI- α -Linie führen. Beim Kupfertarget ist die Intensitätsabhängigkeit der Konversionseffizienz ähnlich wie bei der C-V Stufe, bei höheren Intensitäten scheint die Effizienz in eine Sättigung zu laufen.

Neben der Intensität ist die mittlere Laserleistung P_{Laser} ein entscheidender Parameter zur Maximierung der Röntgenleistung $P_{\text{x-ray}}$, da sie über die Konversionseffizienz η direkt mit-

6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster

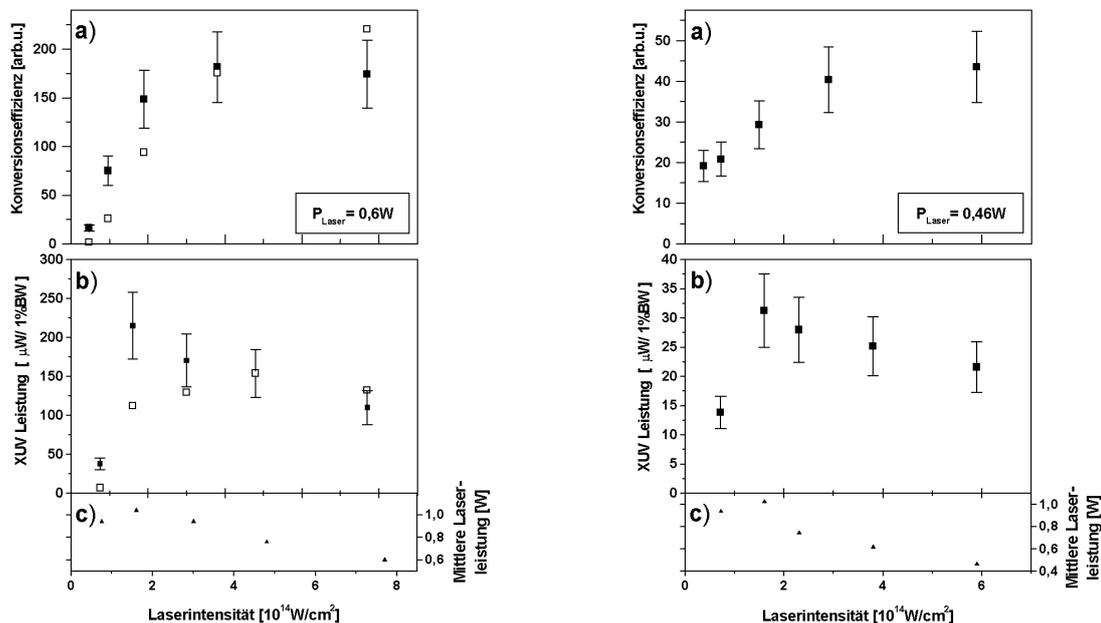


Abbildung 6.4.: Abhängigkeit der Konversionseffizienz a) und der Röntgenleistung b) von der Laserintensität für PET (links, offenes Symbol C-VI- α , geschlossenes C-V- α) und Kupfer (rechts). Die mittlere Laserleistung zu den Punkten in b) ist in c) dargestellt.

einander verknüpft sind (Gleichung (2.29)). Beim Nd:YLF burst-mode Laser sind allerdings Intensität und maximale mittlere Leistung nicht unabhängig voneinander einstellbar. Es ist nicht möglich, die maximal mögliche mittlere Leistung bei gleichzeitig maximaler Intensität (d.h. wenig Pulse pro Burst) zu erhalten, da die Einzelpulsenergie so hoch wäre, dass die Laserkristalle zerstört werden würden. Aus diesem Grund wurde zur Ermittlung der optimalen Kombination aus Intensität und mittlerer Leistung des Lasers eine zweite Messreihe durchgeführt, deren Ergebniss in Abbildung 6.4b) zu sehen ist. Dabei zeigt sich, dass für Kupfer und die C-V-Linie die Röntgenleistung maximal wird bei einer maximalen mittleren Laserleistung, obwohl die dazugehörige Intensität nicht die höchste Konversionseffizienz bringt. Wird allerdings eine gewisse Intensitätsschwelle unterschritten, in diesem Fall $4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, bricht die Röntgenleistung trotz der noch relativ hohen mittleren Leistung ein. Dieses Verhalten kann man auch an der C-VI-Linie beobachten, wo die maximale Emission nicht bei der maximalen mittleren Laserleistung liegt, da die Intensität dort noch zu gering ist für eine gute Effizienz der Konversion. Der Maximalwert liegt bei einer höheren Intensität von $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass für maximale Röntgenemission ein Kompromiss zwischen mittlerer Leistung und Intensität gefunden werden muss. Die Intensität muss über einem gewissen Schwellenwert liegen. Ist dies der Fall, sollte man aber zur Optimierung der Emission die mittlere Leistung steigern und nicht die Intensität. In der Regel bedeu-

tet dies daher nicht eine weitere Erhöhung der Energie einzelner Laserpulse, sondern eine Erhöhung der Repetitionsrate. Für die Plasmaquelle mit dem Kupfertarget sind die optimalen Parameter 200 Pulse pro Burst bei maximal möglicher Laserleistung von 1W, das entspricht einer Intensität von $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die Konversionseffizienz bei dieser Einstellung beträgt $3 \cdot 10^{-3}\%$ ($2\pi \text{sr}$, 1% BW). Dieser relativ geringe Wert ist auf die Tatsache zurückzuführen, das die Pulsdauer von 25 ps für das Erreichen einer hohen Effizienz zu kurz ist [ES91].

6.3. Messung der Quellgröße

Neben den Photonenzahlen ist die Größe der Plasmaquelle für ein Laborspektrometer von entscheidender Bedeutung, da das spektrale Auflösungsvermögen der meisten Monochromatoren direkt von der Quellgröße abhängt (vgl. Gleichung (3.4)). Ein Wert von einigen $10 \mu\text{m}$ ist für eine hohe spektrale Auflösung unerlässlich, ansonsten muss man die Quelle z.B. mit einem Spalt künstlich verkleinern. Dies geht nur auf Kosten von nutzbarer Röntgenstrahlung. Darüber hinaus sollte die Quelle möglichst ortsfest sein ($\leq 5 \mu\text{m}$), da die Aufnahmen der Absorptionsspektren mehrere Minuten dauern und eine driftenden Quelle ebenfalls die Auflösung der Spektren negativ beeinflussen würde. In einem separaten Experiment wurde daher der Durchmesser der Plasmaquelle mit einer Zonenplatte bestimmt.

6.3.1. Versuchsdurchführung

Die Messung wurde bei den Wellenlängen der C-V- α -Linie (4,0 nm) und der C-VI- α -Linie (3,37 nm) durchgeführt. Die Brennweite der Zonenplatte KZP7 beträgt für diese Linien 120 mm bzw. 143 mm (Gleichung (3.12)). Für die erste Brennweite wurde nach Gleichung (3.10) eine Gegenstandsweite von $g = 125 \text{ mm}$ und eine Bildweite von $b = 3000 \text{ mm}$ gewählt, damit beträgt die Vergrößerung $V = 24$. Über die Pixelgröße der CCD-Kamera von $24 \mu\text{m}$ erhält man nach dem Samplingtheorem eine räumlich Auflösung von $2 \mu\text{m}$. Für die zweite Wellenlänge wurde der Aufbau (Abbildung 6.5) nicht verändert, lediglich die Position der Zonenplatte wurde zur Erfüllung der Linsengleichung geändert. Die Vergrößerung war daher etwa 21-fach.

Die Messungen wurden zunächst am PET-Target durchgeführt, um eine scharfe Abbildung der Quelle in einer Spektrallinie zu erzeugen. Dazu wurde die auf einem Positioniertisch fahrbare Zonenplatte entsprechend bewegt. Ein Aluminiumfilter schützte die KZP7 vor Debris und diente zur Streulichtunterdrückung. Für die Messungen am Kupfer-Target wurde lediglich das Target gewechselt, die Abstände jedoch beibehalten. Zur Untersuchung der räumlichen Stabilität der Quelle dienten vergleichende Aufnahmen, die nur mit einem Burst und integriert über mehrere Folgebursts gemessen wurden. Die Laserintensität betrug $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

6.3.2. Ergebnisse und Diskussion

Bilder der Quelle, aufgenommen mit nur einem Laserburst, bei 4,0 nm und 3,37 nm sowohl für Kupfer als auch für PET sind in Abbildung 6.6 zu sehen. Der helle Ring oberhalb des Bildes der C-VI- α -Linie ist das stark defokussierte Bild der C-V- β -Linie. Für beide Target-

6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster

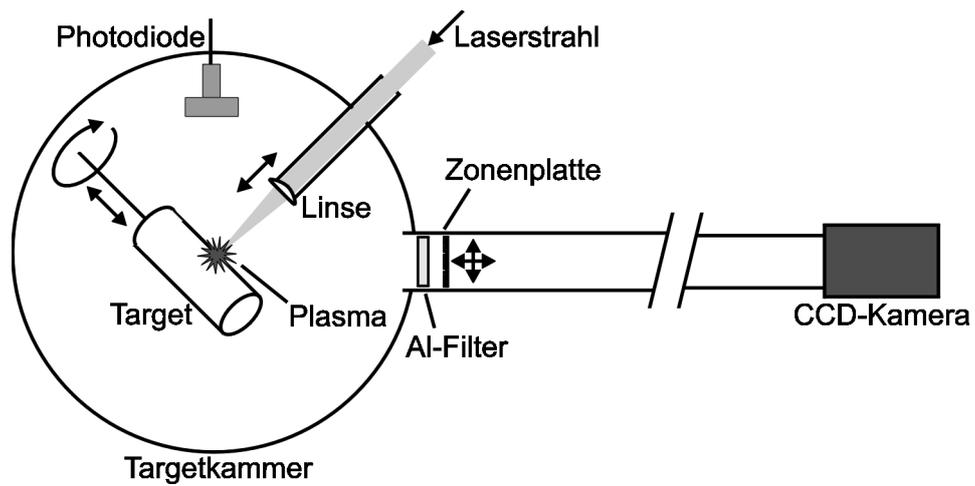


Abbildung 6.5.: Versuchsaufbau zur Vermessung der Quellgröße mit einer Zonenplatte

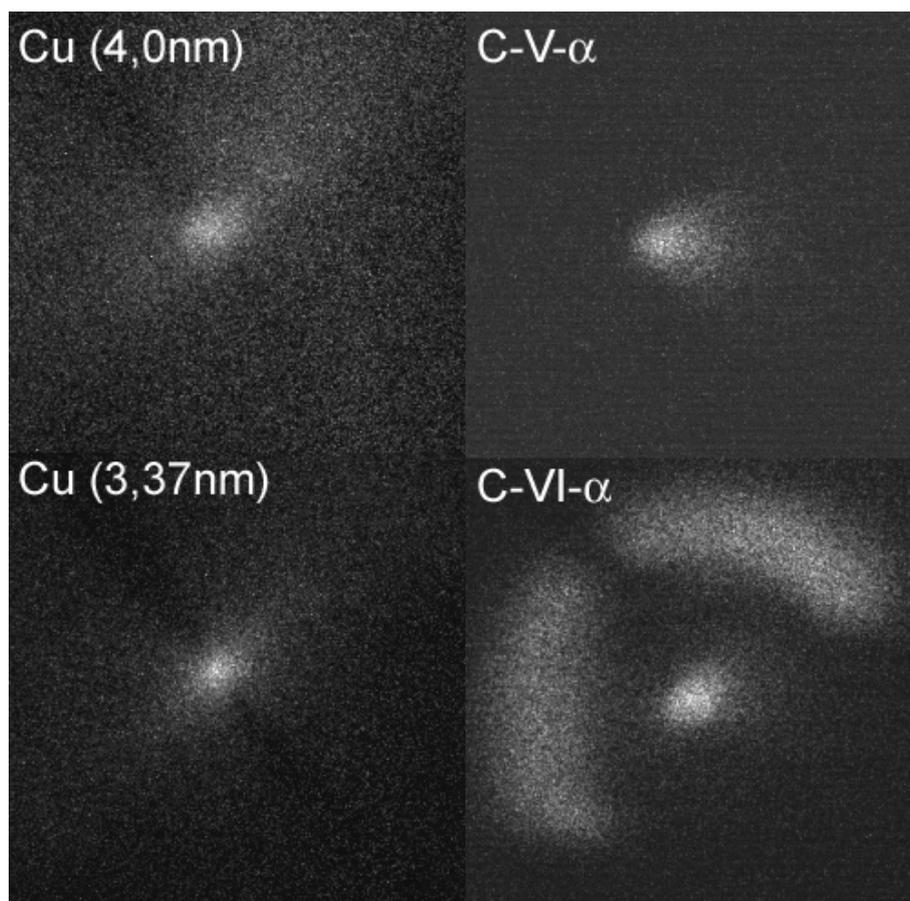


Abbildung 6.6.: Mit der Zonenplatte gemessene Bilder der Quelle (Laserintensität $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) für ein Kupfer- (links) und PET-Target (rechts) bei zwei unterschiedlichen Wellenlängen 4,0 nm (oben) und 3,37 nm (unten)

materialien erhält man im Rahmen der geometrischen Auflösung gleiche Werte für die Quellgröße. Sie beträgt im Mittel in der vertikalen Richtung (senkrecht zum Laserstrahl) $24 \pm 3 \mu\text{m}$ und in der horizontalen (in Richtung des Laserstrahls) $37 \pm 3 \mu\text{m}$, bezogen auf die volle Halbwertsbreite (FWHM). Die Werte wurden aus horizontalen bzw. vertikalen Schnitten durch die Quellbilder ermittelt, indem Gauss-Fits an die Schnitte angepasst und die Halbwertsbreiten der Gauss-Kurven bestimmt wurden. Damit ist die Quelle nur leicht größer als der Laserfokus. Bei einer Integration der Aufnahme über mehrere nacheinander folgende Bursts ergibt sich eine leicht größere Quelle, die Schwankung beträgt $2 \mu\text{m}$. Dies wird durch die schnelle Rotation des Targets hervorgerufen und passt zu den zu erwartenden Schwankungen der Position der Targetoberfläche. Dennoch ist die Größe der Quelle klein genug, um im Absorptionsspektrometer direkt einen Monochromator ohne Eintrittsspalt verwenden zu können.

6.4. Messung der Emissionsdauer

Da auch zeitaufgelöste Untersuchungen im Rahmen eines Pump-Probe-Schemas mit der Röntgenquelle durchführbar sein sollen, musste auch die Dauer der Röntgenemission ermittelt werden, um einen Wert für die Zeitauflösung zu erhalten.

6.4.1. Versuchsaufbau und Durchführung

Wieder wurden die Messungen sowohl am PET- als auch am Kupfertarget durchgeführt. Ein Toroidspiegel ($f = 180 \text{ mm}$) fokussierte die Plasmaquelle ohne Vergrößerung (1:1-Abbildung) auf die Photokathode der Streak-Kamera. Optional konnte ein Gitter (2000 Linien/mm) hinter dem Spiegel in den Strahlengang gefahren werden, um einen spektralen Unterschied in der Emissionsdauer zu erkennen. Die Zeitauflösung der Anordnung (Abbildung 6.7) betrug etwa 7 ps.

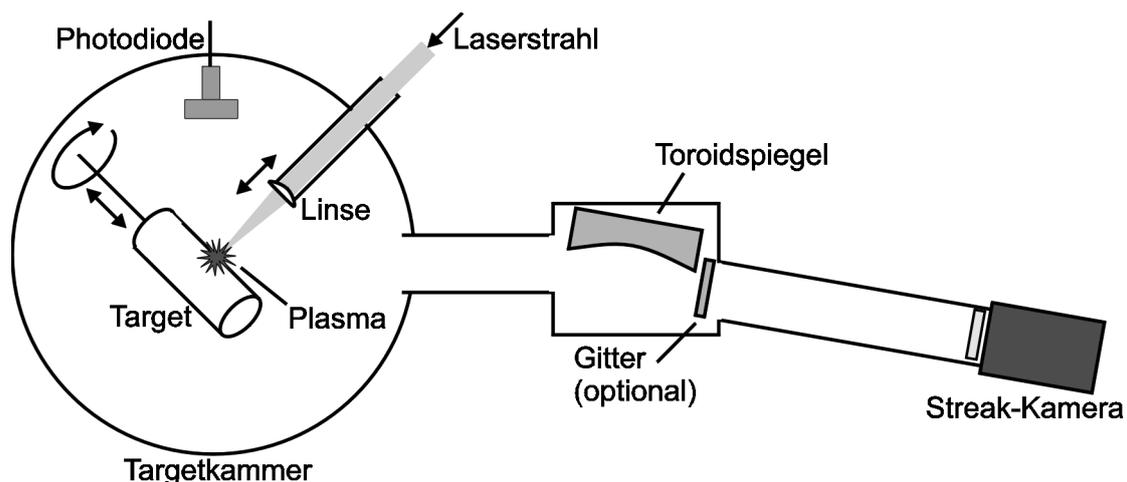


Abbildung 6.7.: Versuchsaufbau zur Messung der Emissionsdauer

6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster

6.4.2. Ergebnisse und Diskussion

Die Messungen zeigen, dass die Röntgenpulsdauer im untersuchten Spektralbereich (1-4 nm) nicht variiert. Allerdings findet sich ein grosser Unterschied zwischen den zwei Targetmaterialien. Bei Kupfer beträgt die Pulsdauer 44 ± 7 ps, bei PET ist sie mit 73 ± 7 ps wesentlich länger. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.8 grafisch dargestellt. Ursache für die unterschiedlichen Emissionsdauern sind die unterschiedlichen Elektronendichten in den Plasmen. Da Kohlenstoff maximal 6-fach ionisiert wird, bei Kupfer aber im Spektrum 18-fach geladenen Ionen nachgewiesen werden können, sind im Kupferplasma mehr Elektronen vorhanden, d.h. die Dichte ist höher. Der Energieaustausch von Elektronen und Ionen geschieht über Stöße (vgl. Kapitel 2), während das Plasma über die Abstrahlung einen Großteil seiner Energie verliert. Nach dem Ende des Aufheizprozesses durch den Laserpuls kann das Kupferplasma also schneller Energie abgeben, da aufgrund der höheren Elektronendichte die Stoßraten zwischen Elektronen und Ionen größer sind und so die Energie schneller abgestrahlt werden kann. Dies führt zu den unterschiedlichen Emissionsdauern. Da beim Kupfer die Röntgenpulsdauer weniger als einen Faktor 2 der Laserpulsdauer beträgt, ist das Resultat im Hinblick auf zeitaufgelöste Messungen zufriedenstellend.

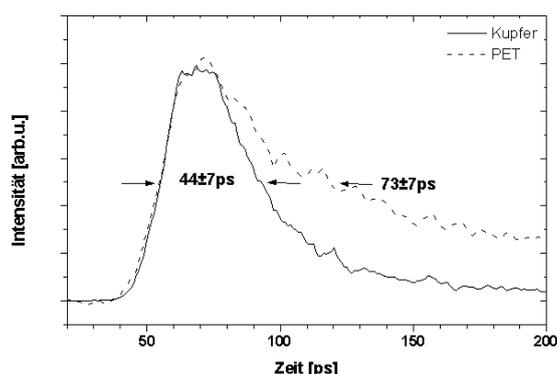


Abbildung 6.8.: Emissiondauer eines PET-Targets (gestrichelt) und eines Kupfertargets (durchgezogen)

Damit ist die Charakterisierung der Quelle abgeschlossen und es sind die optimalen Laserparameter für den Betrieb gefunden. Im letzten Abschnitt dieses Kapitels werden erste Ergebnisse statischer NEXAFS-Untersuchungen gezeigt, die mit dieser Quelle gemacht wurden.

6.5. Beispiele für erste Messungen zur Röntgenabsorption

In diesem Abschnitt sollen drei Beispiele für erste Röntgenabsorptionsmessungen vorgestellt werden, die mit der Laserplasmaquelle gemacht wurden. Um NEXAFS-Messungen mit Hilfe dieser Röntgenquelle durchführen zu können, wurde zunächst ein komplettes Laborabsorptionsspektrometer aufgebaut. Eine ausführliche Beschreibung des Spektrometers findet sich

6.5. Beispiele für erste Messungen zur Röntgenabsorption

in [Bec02], an dieser Stelle soll nur eine kurze Erläuterung erfolgen. Neben dem Kupferplasma als Quelle wurde als Monochromator der Spalt-Gitter-Spektrograph benutzt, allerdings in einer Anordnung, die eine höchstmögliche spektrale Auflösung ermöglicht. Dazu wurde der Abstand Gitter-Detektor auf 950 mm verlängert, man erreicht ein relatives spektrales Auflösungsvermögen von $\lambda/\Delta\lambda \approx 254$. Die Verwendung des Spalt-Gitter-Spektrographen hat den Vorteil, dass ein Wellenlängenbereich von ca. 0,7 nm komplett in einer Aufnahme zu sehen ist. Die zu untersuchende Probe wurde vor dem Gitter in den Strahlengang gebracht. Als Probenträger haben sich dünne Siliziumnitridfenster (100 nm Dicke) bewährt, auf denen auch flüssige Proben eingetrocknet wurden. Die Absorption der Träger ist mit ca. 50% bei 4,4 nm noch akzeptabel.

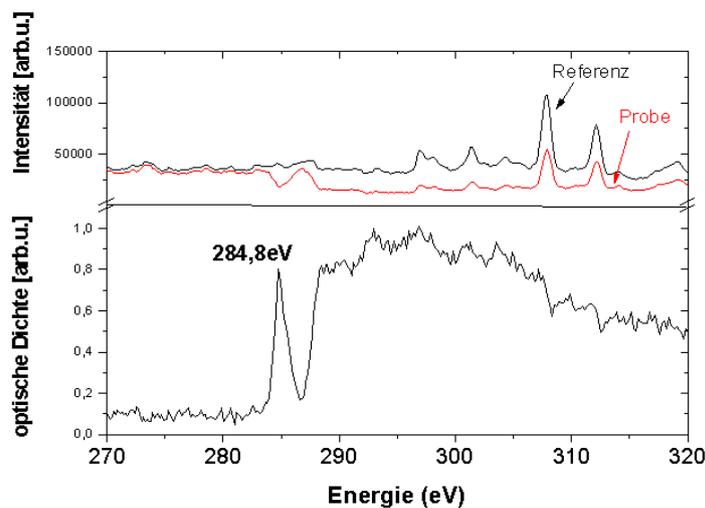


Abbildung 6.9.: Oben: Zwei Spektren, aufgenommen einmal mit Probe (rot) und einmal ohne Probe (schwarz). Unten: Aus den Spektren ermitteltes Absorptionsspektrum von PET (Probe: 900 nm freitragende Folie)

Die Aufnahme eines Absorptionsspektrums erfolgte in zwei Schritten. Zunächst wurde ein Spektrum mit Probe, dann ein Spektrum ohne Probe, lediglich mit Trägerfenster aufgenommen. Die Aufnahmezeit für ein Spektrum betrug typischerweise 5 min. In Abbildung 6.9 ist exemplarisch im oberen Teil ein Referenz- und Probespektrum gezeigt (Probe: 900 nm freitragende PET-Folie, Goodfellow). In der NEXAFS-Spektroskopie ist es dabei üblich, anstatt der Einheit Wellenlänge die Energie in Einheiten von eV zu verwenden ($1 \text{ eV} = 1239,8 \text{ eV}\cdot\text{nm}/\lambda$). Vor der Kante (in Richtung kleinerer Energien) ist die Intensität in den Spektren nahezu gleich, hinter der Kante allerdings erkennt man aufgrund der unterschiedlichen Transmission der Strahlung durch die Probe deutliche Unterschiede. Das aus diesen Daten nach Gleichung (6.1) ermittelte NEXAFS-Spektrum der Probe ist im unteren Bild zu sehen. Bei der Probe handelte es sich um einen dünnen PET-Film. Dieses Material wurde für erste Testmessungen mit dem Absorptionsspektrometer ausgewählt, da es sich leicht in Form von dünnen Folien herstellen lässt und in der Literatur eine Reihe von Messungen mit diesem Material veröffentlicht sind, die an Synchrotronquellen gemacht wurden (z.B. [UHS⁺97, ONK⁺95]). Im ermittelten NEXAFS-Spektrum ist der starke Anstieg der Ab-

6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster

sorption im Bereich der K-Kante deutlich zu sehen. Auffallend ist ein Absorptionspeak bei 284,8 eV. Zur Erklärung dieses Peaks muss man die Molekülstruktur von PET heranziehen (Abbildung 6.12a)). Dieses besteht aus einer langen Kette von einzelnen $C_{10}H_8O_4$ Gliedern. Innerhalb eines solchen Gliedes befindet sich ein Benzolring mit einem π -Elektronensystem, außerdem zwei Kohlenstoff-Sauerstoff Doppelbindungen. Diese Art der Bindungen werden durch Molekülorbitale beschrieben. Es ist nun möglich, aus dem $1s$ -Zustand einen Übergang eines Elektrons in ein unbesetztes Molekülorbital durch die Absorption eines Photons zu erhalten. Die Vorbande, die aus zwei Einzelbanden besteht, gehört zu solchen Übergängen in die energetisch niedrigsten gelegenen unbesetzten Orbitale.

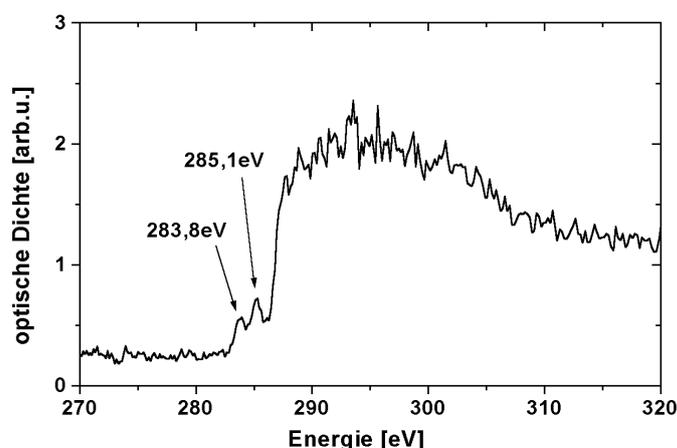


Abbildung 6.10.: Absorptionsspektrum von TAPH₂ (Tetra(*tert*-butyl)tetraazaporphyrin) (vgl. [Bec02])

Abschließend sollen zwei Spektren von biologisch relevanten organischen Molekülen gezeigt werden. Tetra(*tert*-butyl)tetraazaporphyrin (TAPH₂) gehört zur Gruppe der Porphyrine [Mil97]. Dies sind Pigmente, die man als Grundbausteine des Lebens bezeichnen kann. Sie finden sich zum einen im Chlorophyll von Pflanzen und Bakterien und spielen in der Photosynthese eine wichtige Rolle. Zum anderen sind sie Bausteine des Hämoglobins, das für den Transport des Sauerstoffs im Blut zuständig ist. Das TAPH₂-Molekül dient dabei als Modellsystem für einen solchen Baustein, aus dem komplexere Molekülsysteme zusammengesetzt werden. Charakteristisch für das TAPH₂-Molekül sind vier Pyrrolringe, die wiederum ein großes π -Elektronensystem bilden (Abbildung 6.12b)). Im Absorptionsspektrum (Abbildung 6.10) sind Vorbanden bei 283,8 eV und 285,1 eV zu erkennen, diesmal aber zwei deutlich aufgelöste Banden. Sie gehören wieder zu Übergängen in unbesetzte Orbitale, allerdings ist in diesem Fall der energetische Abstand dieser unbesetzten Niveaus deutlich größer als bei PET, daher ist der Spektrograph in der Lage, diese Banden einzeln aufzulösen.

Ebenfalls in Pflanzen findet sich ein anderes Pigment, β -Carotin, das der Gruppe der Carotenoide zugeordnet wird. Diese sind wie Porphyrine wichtige Komponenten der Pigment-Protein-Komplexe in photosynthetischen Organismen [SJL⁺00]. Sie dienen dabei in licht-sammelnden Molekülkomplexen als Regulatoren des internen Energieflusses unter intensiver äußerer Bestrahlung und als Stabilisatoren des gesamten Protein Netzwerkes. β -Carotin be-

6.5. Beispiele für erste Messungen zur Röntgenabsorption

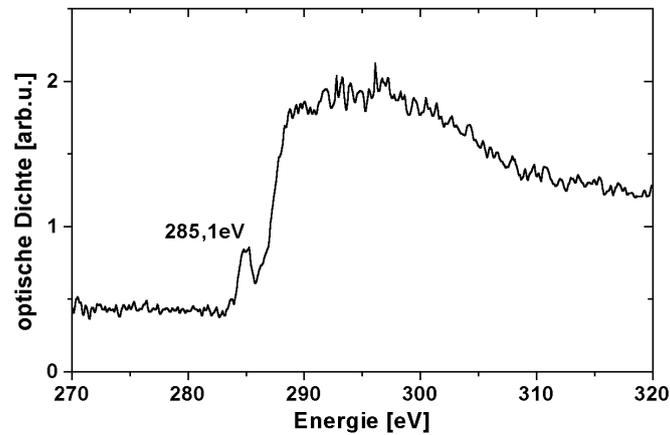


Abbildung 6.11.: Absorptionsspektrum von β -Carotin

sitzt konjugierte Kohlenstoff-Doppelbindungen, durch die wiederum ein π -Elektronensystem gebildet wird (Abbildung 6.12c)). Infolge dessen findet sich auch wieder eine ausgeprägte Vorbanke bei 285,1 eV im NEXAFS-Spektrum (Abbildung 6.11). Aus der Lage dieser Banke und aus UV-Photoelektron-Spektren, die am Synchrotron aufgenommen wurden, konnte erstmals die Lage des energetisch niedrigsten Singulett-Zustandes von β -Carotin bestimmt werden [BSL⁺01]. Dieser Zustand kann mit der herkömmlichen optischen Spektroskopie im sichtbaren Bereich wegen eines Übergangsverbotes aus dem Grundzustand nicht nachgewiesen werden.

6. Röntgenquelle für Absorptionsspektroskopie im Wasserfenster

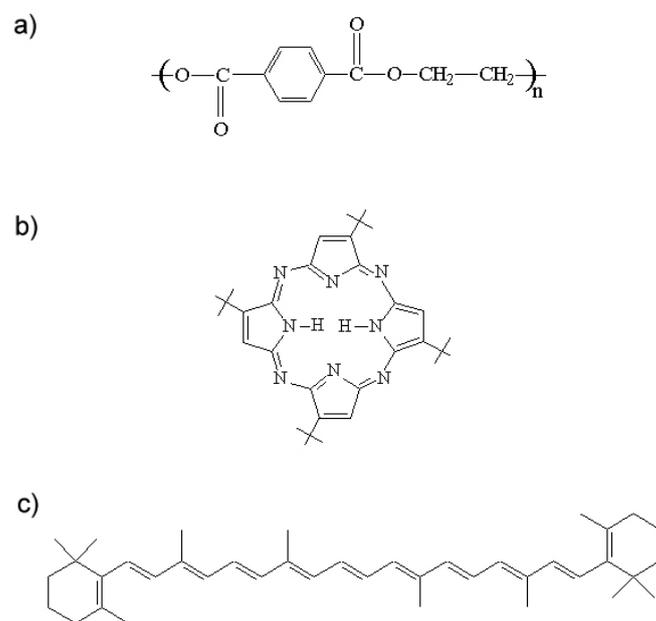


Abbildung 6.12.: Strukturformeln der untersuchten Substanzen: a) PET, b) TAPH₂, c) β -Carotin

7. Untersuchung von Quellen für harte Röntgenstrahlung

In den vorherigen Kapiteln wurden ausführliche Untersuchungen an laserinduzierten Plasmen vorgestellt, die als Laborquellen für EUV- und weiche Röntgenstrahlung dienen sollen. Diese sind Ersatz oder Ergänzung zu Synchrotronstrahlungsquellen und ermöglichen den Laborbetrieb einer Vielzahl von Anwendungen in diesem Spektralbereich. Natürlich werden an Synchrotronquellen auch Untersuchungen mit härterer Röntgenstrahlung¹ im keV-Bereich betrieben, z.B. Experimente zur Strukturanalyse von kristallisierten Substanzen mit Hilfe der Röntgenbeugung, die sogenannte Laue-Röntgendiffraktion [RBH⁺99, WSN⁺97], oder wiederum die NEXAFS-Spektroskopie an den K-Kanten von Elementen mit höheren Kernladungszahlen, die im Bereich von einigen keV liegen (z.B. Eisen oder Calcium). Laborquellen könnten diesen Spektralbereich einer größeren Zahl von Anwendern verfügbar machen, ein anderer entscheidender Aspekt ist aber auch eine Zeitauflösung im fs-Bereich, wenn man sehr kurz gepulste Laserplasmaquellen verwendet. Diese Zeitauflösung ist an einem Synchrotron nur schwer zu erreichen [War96]. Erste Ansätze zur Verwendung von diesen Quellen gibt es insbesondere im Bereich der zeitaufgelösten Bragg-Röntgendiffraktion [RPJG⁺99, GRPJ⁺97, FMU⁺01].

Die Anwendung bestimmt auch hier die Anforderungen an das gewünschte Spektrum. Ist man an Linienstrahlung interessiert, wie z.B. bei der Bragg-Röntgendiffraktion, verwendet man in der Regel die charakteristische Röntgenstrahlung der Elemente (vgl. Abschnitt 2.5.2), während z.B. in der Absorptionsspektroskopie und bei Laue-Diffraktion ein kontinuierliches Spektrum notwendig ist. Dies wird im Bereich harter Strahlung vor allen Dingen durch Bremsstrahlung erzeugt.

Wie schon in Kapitel 5 gezeigt, erreicht man durch eine Erhöhung der Intensität auf Werte größer 10^{16} W/cm², dass sich das Spektrum eines Laserplasmas in Richtung härterer Strahlung verschiebt. Experimentell sind solche Werte am einfachsten über eine Verkürzung der Pulsdauer in den Bereich einiger 10 fs zu erreichen, da die Möglichkeiten der besseren Fokussierung und der Erhöhung der Laserpulsenergie begrenzt sind. So werden zur Erzeugung solcher Plasmen Ti:Sa-CPA-Lasersysteme verwendet (CPA = chirped pulse amplification) [SM85]. Diese Systeme arbeiten in der Regel mit Repetitionsraten im Bereich von 10 Hz, wobei man Intensitäten im Bereich 10^{18} W/cm² oder höher erreichen kann [KNS⁺97]. An dieser Stelle sollen dagegen Messungen mit Ti:Sa-Lasern vorgestellt werden, die mit einer Repetitionsrate von 1 kHz betrieben werden [RKK⁺93, SCL⁺97, BS00]. Die verwendeten Laser erreichen momentan noch Intensitäten im Bereich 10^{16} W/cm², doch verglichen mit üblichen Höchsfeld-Ti:Sa-Systemen besitzen sie eine sehr kompakte Bauart. Das Potenzial von kHz-fs-Lasern zur Erzeugung harter Röntgenstrahlen soll in den folgenden Experimenten untersucht werden.

¹In diesem Spektralbereich verwendet man nicht mehr die Wellenlänge zur Beschreibung, sondern die Energie in Einheiten von keV

7.1. Untersuchungen an Festkörpertargets

Wie schon mehrfach erwähnt, stellen hochrepetierende Lasersysteme besondere Anforderungen an das Targetsystem. Da sich in den Experimenten, die in Kapitel 6 beschrieben werden, der Einsatz eines schnell rotierenden Metallzylinders als Target bewährt hat, soll es für erste Messungen an einem kHz-fs-Laser ebenfalls verwendet werden. Als Targetmaterialien werden wieder Kupfer und Gold gewählt. Kupfer ist in diesem Zusammenhang besonders interessant, weil in der Literatur eine Reihe von Messungen zur K-Emission veröffentlicht wurden, die einen Vergleich ermöglichen [EPF⁺00, FHN⁺99, GSWB01, TMF⁺98, YFH⁺98].

7.1.1. Versuchsaufbau und Durchführung

Es wurde dieselbe Targetkammer wie in Abschnitt 6.2.1 beschrieben verwendet. Ebenso die Targethalterung und die Fokussierungsoptik, die eine Fokussierung auf $10\ \mu\text{m}$ (FWHM) zuließ. Beim Laser handelt es sich um ein kommerzielles Ti:Sa-System² bestehend aus einem Oszillator und einem Multipass-Verstärker, der eine Pulsdauer von 25 fs bei einer Maximalenergie von $500\ \mu\text{J}$ besitzt. Damit ist eine Intensität von $2,5 \cdot 10^{16}\ \text{W}/\text{cm}^2$ erreichbar. Als Detektor diente die AMPTEK-Diode mit Vielkanalanalysator (Abschnitt 3.3.2), die sich in einer Entfernung von 860 mm vom Plasma befand. Ein Berylliumfilter sollte niederenergetische Strahlung absorbieren, zusätzlich schützte eine $12\ \mu\text{m}$ Aluminiumfolie vor einer Beschädigung des Detektors durch Debris. Zur weiteren Reduzierung des Photonennflusses war vor der Diode ein $1,5\ \text{mm}$ großes Pinhole aus Blei platziert. Der gesamte Aufbau ist in Abbildung 7.1 schematisch dargestellt.

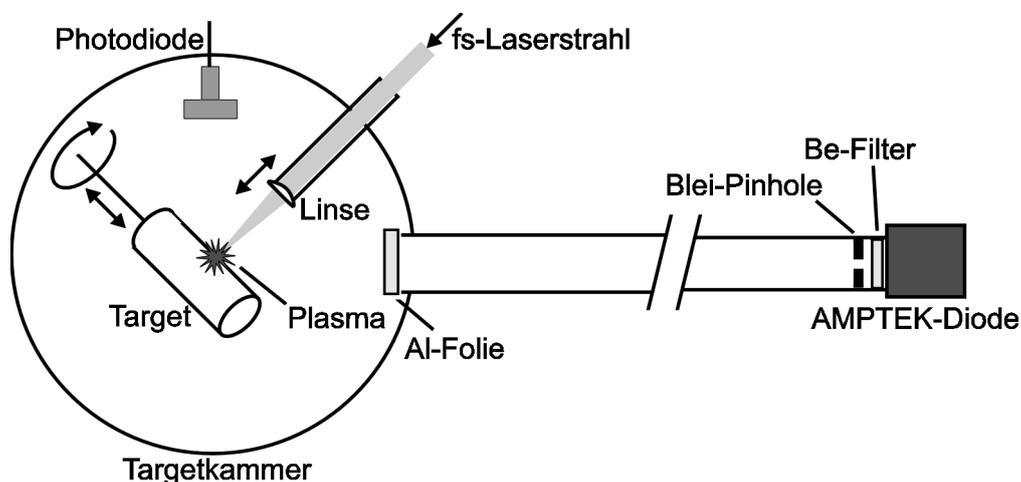


Abbildung 7.1.: Versuchsaufbau zur Messung harter Röntgenstrahlung

Zunächst wurde eine Versuchsreihe mit dem Kupfertarget durchgeführt. Dazu wurde die Energie des Laser im Bereich von $150\text{--}400\ \mu\text{J}$ variiert. Anschließend wurde für zwei Messungen ein Gold-Target verwendet.

²Der Laser ist Teil des MBI fs-Laser Applikationslabores

7.1.2. Ergebnisse

In Abbildung 7.2 ist ein Kupferspektrum bei 400 μJ Pulsenergie gezeigt, die Messzeit betrug 100 s. Deutlich aufgelöst zu sehen sind die Cu-K_α -Linie (8,05 keV) und die Cu-K_β -Linie (8,9 keV) über einem Bremsstrahlungskontinuum. Die in diesem Bereich liegenden Spektrallinien von Innerschalenübergängen hochgeladenen Ionensorten sind nicht zu sehen, da die entsprechenden Ionen im Plasma nicht erzeugt werden. Der Abbruch des Kontinuums bei etwa 4 keV ist auf die verwendeten Filter zurückzuführen. Oberhalb von 12 keV ist das

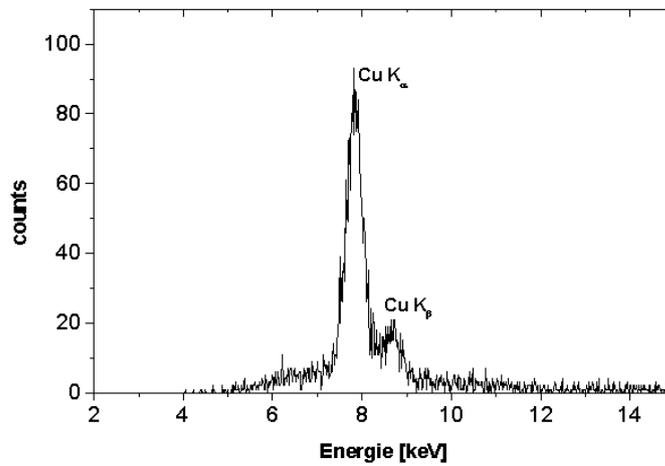


Abbildung 7.2.: Spektrum eines Kupfertargets im Bereich 1-10 keV (Laserintensität $2,5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$, Pulsdauer 25 fs)

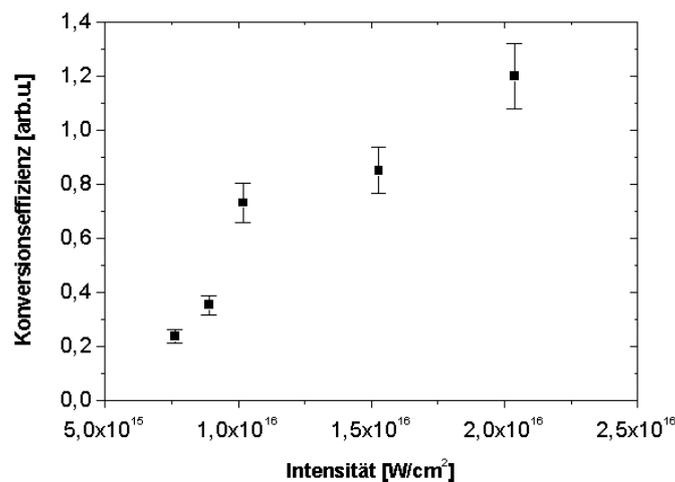


Abbildung 7.3.: Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Intensität beim Kupfertarget (Laserpulsdauer 25 fs)

7. Untersuchung von Quellen für harte Röntgenstrahlung

Bremsstrahlungskontinuum nur noch sehr schwach ausgeprägt. Integriert über den Bereich von 4–12 keV emittiert das Plasma etwa 10^9 Photonen/(s·4πsr) (bezogen auf 1 kHz Repetitionsrate). Das Ergebnis der Messungen zur Energie-, d.h. Intensitätsvariation, ist in Abbildung 7.3 gezeigt. Aufgetragen ist wieder die über den genannten Spektralbereich integrierte Anzahl der Counts normiert auf die Laserenergie, also die Konversionseffizienz, über der Intensität. Man erkennt, dass eine höhere Intensität zu einer erhöhten Effizienz führt. Wie zu erwarten war, ist die optimale Intensität für eine maximale Emission mit diesem Lasersystem nicht erreichbar.

Gold als Targetmaterial zeigt dagegen ein ganz anderes Spektrum (Abbildung 7.4). Es besteht aus einem breiten Bremsstrahlungskontinuum, das bis zu hohen Energien reicht. Die charakteristische K-Strahlung von Gold liegt oberhalb von 68 keV, sie kann in diesem Plasma nicht erzeugt werden. Der Vergleich von zwei Messungen zu verschiedenen Energien bzw. Intensitäten zeigt wiederum, dass eine Erhöhung eine deutliche Steigerung der Emission bringt. Die Photonenzahl, bestimmt durch eine Integration über den gesamten dargestellten Energiebereich, erreicht einen Wert von $2 \cdot 10^9$ Photonen/(s·4πsr), vergleichbar mit dem Kupfertarget. Der Grund für den im Vergleich zu Kupfer sehr starken Untergrund liegt in der viel höheren Kernladungszahl von Gold, da die Stärke der Bremsstrahlung von Z abhängig ist [TD99].

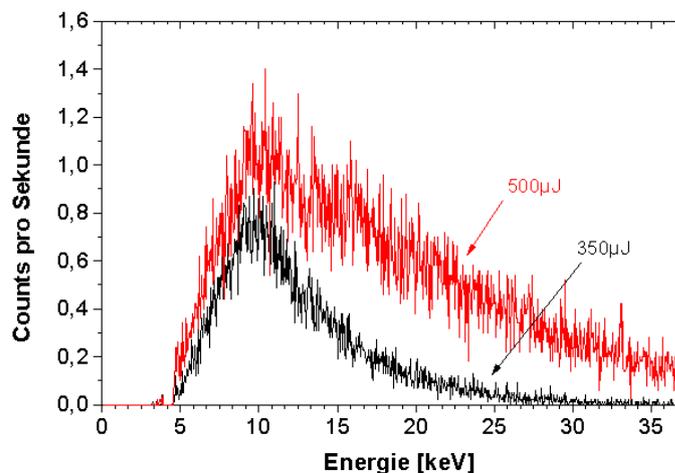


Abbildung 7.4.: Goldspektrum bei 350 µJ (schwarz) und 500 µJ (rot) Laserenergie (Laserpulsdauer 25 fs)

Ein entscheidendes Problem, das bei diesen Messungen offenbar wurde, ist das Auftreten sehr starker Debris besonders bei Gold. Es ist wesentlich stärker als das Debris, das bei den Experimenten mit denselben Targets und dem burst-mode Laser entstand. Ein dünnes Glasplättchen war zum Debrisschutz vor der Fokussierungslinse befestigt. Dieses Plättchen musste nach jeder einzelnen Messung ausgewechselt werden, da die Transmission der Laserstrahlung durch den Debrisfilm merklich abnahm.

7.2. Untersuchungen an einem Gallium-Jet-Target

Ein schnell rotierender Metallzylinder erfüllt die Anforderungen eines sich schnell erneuernden Targetsystems, jedoch ist das Debrisproblem bei diesem klassischen Festkörpertarget evident. Von großem Vorteil wäre es dagegen, wenn die Verwendung eines Jet-Targetsystems auch für die relevanten metallischen Targetmaterialien möglich wäre, da ein Flüssigkeitsstrahl sowohl eine kontinuierliche Targeterneuerung bietet als auch im Hinblick auf Debris wesentlich günstiger ist. Erste aus der Literatur bekannte Versuche wurden mit in Wasser gelösten Metallsalzen durchgeführt [TMF⁺98], jedoch ist die Röntgenausbeute aufgrund der relativ geringen Anzahl von Metallatomen im Jet gering. Daher liegt die Idee nahe, direkt ein verflüssigtes Metall in Form eines dünnen Strahls zu benutzen, um ein mass-limited Target zu erhalten. Voraussetzung dafür ist ein möglichst niedriger Schmelzpunkt, aber auch bestimmte physikalische Eigenschaften, die die Formung eines laminaren Strahls ermöglichen. Nach dem toxischen Quecksilber ist Gallium das metallische Element mit dem niedrigsten Schmelzpunkt (29,8° Celsius), deshalb wurde es für diese Experimente ausgewählt³. Eine Tabelle mit weiteren geeigneten Materialien findet sich in [KTS⁺02].

7.2.1. Versuchsaufbau und Durchführung

Der Aufbau ist an anderer Stelle ausführlich beschrieben [KTS⁺02], deshalb erfolgt hier nur eine kurze Zusammenfassung. Gallium wurde in einem Metallzylinder auf eine Temperatur von 30° Celsius erhitzt und verflüssigt. Mit Hilfe eines Düsensystems wurde ein Metalljet mit einem Durchmesser von 30 μm in einer Vakuumkammer erzeugt. Die Länge des laminaren Teil des Strahls betrug etwa 4 mm bei einer Jetgeschwindigkeit von 100 m/s. Eine Linse mit einer Brennweite von $f = 7$ cm fokussierte den Laser 2 mm unterhalb der Düsenöffnung auf den Strahl, die Fokusgröße war 10 μm . Bei dem Laser handelte es sich um ein 1 kHz Ti:Sa-System bestehend aus einem cavity dumped mode-locked Oszillator, einem regenerativen Verstärker und einem double pass Booster Verstärker. Der Laser lieferte eine Pulsenergie von 1,8 mJ bei einer Pulsdauer von 50 fs. Die Intensität auf dem Target war $3 \cdot 10^{16}$ W/cm². Das Röntgenspektrum wurde in einer Entfernung von 300 mm vom Plasma mit dem AMPTEK-Detektor aufgenommen. Zur Reduzierung des Photonenflusses war ein 1,5 mm Blei-Pinhole vor dem Detektor montiert, ein 12 μm Aluminium-Filter unterdrückte Energien unterhalb von 2,5 keV. Eine Diode diente zur Optimierung des Röntgensignals.

7.2.2. Ergebnisse

Das erste mit einem Gallium-Jet aufgenommene Spektrum ist in Abbildung 7.5 gezeigt. Es besteht aus einem breiten Bremsstrahlungs-Kontinuum und den beiden Gallium K_{α} - und K_{β} -Linien bei 9,25 keV bzw. 10,3 keV. Die Photonenzahl in beiden Linie beträgt zusammen ungefähr $4 \cdot 10^4$ Photonen/(Puls·sr) (1 kHz Repetitionsrate), unter der Annahme einer isotropen Emission entspricht dies einer mittleren Photonenzahl von $5 \cdot 10^8$ Photonen/(s·4 π sr).

³Die Experimente wurden zusammen mit Dr. M Faubel, Dr. G. Korn, Dr. H. Stiel und Dipl. Phys. A. Thoß durchgeführt, Aufgabe des Autors war die Messung des Spektrums des Gallium-Jets.

7. Untersuchung von Quellen für harte Röntgenstrahlung

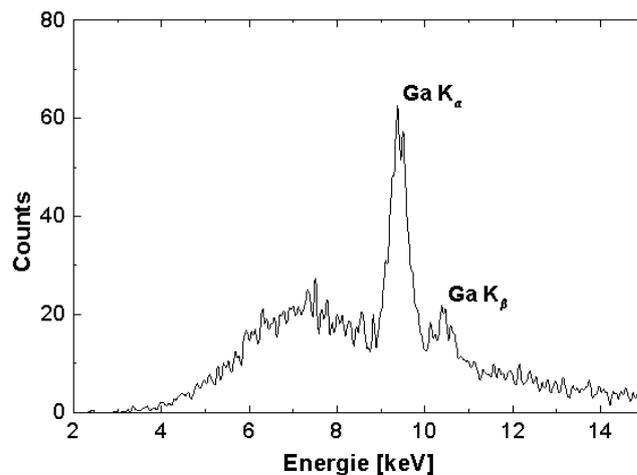


Abbildung 7.5.: Erstes Röntgenspektrum aufgenommen mit einem Gallium-Jet-Target (Laserintensität $3 \cdot 10^{16}$ W/cm², Pulsdauer 50 fs)

7.3. Diskussion

Kompakte kHz-fs-Lasersysteme bieten eine interessante Alternative zu herkömmlichen Hochintensitäts-Kurzpulslasern mit geringer Repetitionsrate. Auch wenn die kHz-Laser zur Zeit noch nicht identische Spitzenintensitäten erzielen können, sind sie doch für die Erzeugung harter Röntgenstrahlung geeignet. In Abbildung 7.6 ist ein Vergleich der Konversionseffizienz beim Kupfertarget mit anderen in der Literatur beschriebenen Werten gezeigt. Es handelt sich dabei um Arbeiten von:

- Eder et al.: Target rotierender Kupferstab, Laser 10 Hz Repetitionsrate, 200 fs Pulsdauer, 200 mJ Pulsenergie, Intensität $I = 10^{17}$ W/cm² [EPF+00]
- Fujimoto et al.: Kupferscheibe, 10 Hz, 42 fs, 20 mJ, $I = 4 \cdot 10^{16}$ W/cm² [FHN+99]
- Guo et al.: Kupferdraht, 20 Hz, 150 fs, 80 mJ, $I = 10^{18}$ W/cm² [GSWB01]
- Tompkins et al.: Jet aus Kupfernitratlösung, 1 kHz, 100 fs, 500 μJ, $I = 10^{16}$ W/cm² [TMF+98]
- Yoshida et al.: Kupferscheibe, 10 Hz, 42 fs, 60 mJ, $I = 10^{17}$ W/cm² [YFH+98]

Zusätzlich ist in die Grafik auch noch der Wert für den Gallium-Jet eingezeichnet. Es zeigt sich, dass auch hier die Effizienz von der Laserintensität abhängt. Die optimale Intensität liegt im Bereich von 10^{17} W/cm², was mit dem in theoretischen Arbeiten berechneten Wert übereinstimmt [RGUF00]. Oberhalb dieses Wertes sinkt die Konversionseffizienz ab. Grund für dieses Verhalten sind die Geschwindigkeiten der schnellen Elektronen. Je höher die Intensität, desto stärker werden die Elektronen beschleunigt. Allerdings zeigen theoretische Überlegungen, dass für die Erzeugung von K-Strahlung eine optimale Geschwindigkeit existiert, entsprechend einer optimalen Intensität [RGUF00]. Vor diesem Hintergrund ordnen

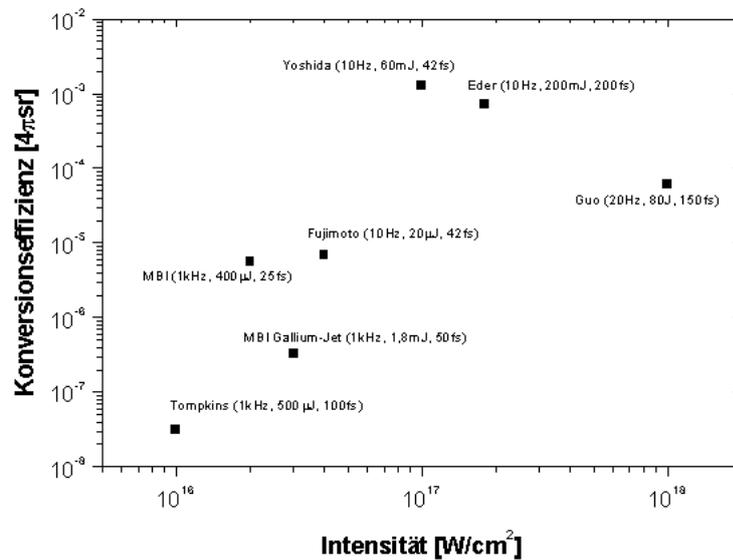


Abbildung 7.6.: Vergleich der in der Literatur beschriebenen Konversionseffizienzen bei einem Kupfertarget in Abhängigkeit der Laserintensität. Zusätzlich eingezeichnet ist der Wert für das Gallium Jet-Target.

sich die mit dem MBI-kHz-System gemessenen Werte in das Schema ein. Arbeiten zu einer Erhöhung der Laserenergie des kHz-Systems sind geplant, so dass man in Zukunft in den Bereich der optimalen Intensität vorstoßen wird.

Ein Problem bei der Erzeugung harter Röntgenstrahlung mit Festkörpertargets ist das Debris, das durch den Einsatz von Drahttargets nur bedingt gemindert werden kann. Zusätzlich wird häufig ein Debris-Schutzsystem für die Fokussierungsoptik benötigt, wie z.B. eine dünne Mylarfolie, die permanent über ein Rollensystem erneuert wird [GSWB01]. Eine mögliche Lösung scheint daher die Verwendung von Flüssigkeitsstrahl-Targets zu sein, wie sie sich im EUV- und weichen Röntgenbereich bewährt haben. Allerdings handelt es sich bei den in Frage kommenden Targetmaterialien in der Regel um Metalle, was dieses System experimentell aufwendig macht. Dennoch konnte in einem ersten Experiment gezeigt werden, dass für bestimmte Metalle die Erzeugung dünner Jets möglich ist und sie auch tatsächlich als Target für ein Laserplasma verwendet werden können. Das Debris ist dabei so weit gemindert, dass ein kontinuierlicher Betrieb der Quelle ohne aufwändige Schutzmechanismen für die Fokussierungsoptik funktioniert. Es zeigt sich, dass die Konversionseffizienz um eine Größenordnung höher ist als bei der Verwendung von Metallsalz-Lösungen.

Auch im Hinblick auf die Dauer der Röntgenemission, einem wichtigen Wert für die zeitaufgelöste Röntgendiffraktion, kann ein dünner Strahl als Target von Vorteil sein, da theoretische Arbeiten sehr kurze Röntgenpulse um 100 fs nur bei sehr dünnen Targets im Bereich unter 10 μm erwarten [RGUF00]. Ursache hierfür ist die Zeit, die die Elektronen zum Durchfliegen des Targets benötigen und währenddessen Röntgenstrahlung erzeugt wird. Bei massiven Festkörpertargets ist diese Wechselwirkungszeit aufgrund der Targetausdehnung

7. Untersuchung von Quellen für harte Röntgenstrahlung

viel größer. Eine Messung der Pulsdauer der Emission des Gallium-Jettargets steht allerdings noch aus.

8. Zusammenfassung und Ausblick

Laserinduzierte Plasmen bilden die Basis für eine kompakte Form von Laborquellen für EUV- und Röntgenstrahlung. Während die prinzipiellen Vorgänge in Plasmen, die mit niedriger oder mittlerer Laserintensität erzeugt werden, im wesentlichen verstanden sind, befasst sich die Grundlagenforschung heutzutage primär mit der Wechselwirkung von Laserstrahlung und Materie bei Intensitäten oberhalb von 10^{19} W/cm². Steht man jedoch vor dem konkreten Problem, eine Röntgenquelle für eine Anwendung bauen zu müssen, sind nach wie vor eine Reihe von Überlegungen und grundlegenden Untersuchungen notwendig, um Strahlung optimal zu erzeugen. Grund ist das Fehlen einer generellen Theorie zur Berechnung von Röntgenspektren in Abhängigkeit der verschiedenen Parameter, die die Charakteristik des Spektrum bestimmen. Zunächst muss das Targetmaterial und die Art des Targetsystems ausgewählt werden. Der Laser und seine Parameter Intensität und Pulsdauer haben danach den größten Einfluss auf die Emissionscharakteristik des Plasmas.

8.1. EUV-Emission eines Wasserstrahl- und Xenon-Cluster-Targets

In vielen Laboren hat man häufig nur einen bestimmten Laser zur Verfügung, der für die Erzeugung eines Plasmas geeignet ist, auch wenn die Parameter des Lasers nicht optimal sein sollten. Doch kann eine Laserplasmaquelle den Sprung aus dem Labor in die Anwendung als Lichtquelle für einen industriellen Zweck nur schaffen, wenn Target und Laser perfekt aufeinander abgestimmt sind. Als Beispiel kann hier die EUV-Lithographie dienen, die unter Umständen die erste industrielle Nutzung eines Laserplasmas darstellt. Es sind zwar eine Vielzahl von Spektren mit den verschiedensten Lasern und Targetmaterialien im EUV-Bereich gemessen worden, doch die Frage, welches die Parameter für einen optimalen Betrieb einer Quelle sind, bleibt offen. Eng verknüpft ist dies Problem meist mit der Vergleichbarkeit der Messungen, da die Messung von absoluten Photonenzahlen hohe Anforderungen an die Messtechnik stellt. Zwei Kapitel dieser Arbeit widmeten sich daher grundlegenden Untersuchung von Quellen für die EUV-Lithographie. Für derartige Experimente bietet das MBI gute Voraussetzungen, da sowohl die kalibrierte Messtechnik als auch eine Reihe von Lasersystemen zur Verfügung stehen, mit denen man einen Bereich von einigen Größenordnungen sowohl in der Laserintensität als auch in der Pulsdauer überstreichen kann.

Erste Messungen wurden an einem Wasserstrahl-Target durchgeführt. Die Emission im EUV-Bereich stammt dabei von Sauerstoffionen und zeigt ein Linienspektrum, für die Lithographie wählt man eine bestimmte Spektrallinie (O-VI, $1s^22p-1s^24d$ bei 12,99 nm) aus. Die Untersuchungen konzentrierten sich dabei auf eine Maximierung der Konversionseffizienz und die Frage, ob ein dünner Jet als Target für einen Laser hoher mittlerer Leistung, wie er für die Lithographie notwendig ist, überhaupt geeignet ist. Der MBI-burst-mode Laser stellte dabei ein Modellsystem für einen solchen Laser dar, und es konnte erstmals gezeigt werden, dass ein Flüssigkeitsstrahl die Anforderungen erfüllt. Durch eine Variation der Pulsdauer und

8. Zusammenfassung und Ausblick

der Energie des Lasers ist man in der Lage, einen Bereich von drei Größenordnungen in der Intensität mit demselben Lasersystem zu überstreichen. Dadurch konnte erstmals systematisch die Abhängigkeit der Konversionseffizienz von Intensität und Pulsdauer untersucht werden. Den höchsten Wert von 0,12% ($4\pi\text{sr}$) bei 13 nm Wellenlänge erhält man mit ns-Pulsen und einer Intensität von 10^{12} W/cm^2 . Dabei ist der optimale Intensitätsbereich relativ eng definiert, da die Emission nur von einer Ionensorte stammt, für deren Erzeugung die Bedingungen im Plasma optimal sein müssen. Leider scheint der Wert der Effizienz für die industrielle EUV-Lithographie zu gering zu sein. Allerdings bieten sich für die Wasserjetquelle alternative Einsatzmöglichkeiten in der EUV-Metrologie an [VDHB99, JBE⁺01].

In den meisten Laboren beschränken sich daher die Untersuchungen zu potentiellen EUV-Lichtquellen auf das Targetmaterial Xenon. Schienen hier bis vor zwei Jahren die Betriebsparameter einer Xenonquelle klar zu sein, besteht aktuell eine große Nachfrage nach systematischen Untersuchungen, da sich herausgestellt hat, dass die Anforderungen der Lithographie an die Quelle in Bezug auf die Konversionseffizienz noch nicht erreicht wurden. Um zu dieser Thematik einen Beitrag zu leisten, konzentrierten sich die Experimente am MBI auf ein Xenon-Cluster Target. Aufgeklärt werden sollte dabei der scheinbare Widerspruch zwischen in der Literatur beschriebenen Experimenten, die mit hohen Intensitäten $>10^{16} \text{ W/cm}^2$ und kurzen fs-Pulsen durchgeführt wurden und Experimenten mit ns-Pulsen niedriger Intensität. Neben dem burst-mode-Laser kam für den Hochintensitätsbereich auch ein Ti:Sa-CPA-Laser zum Einsatz, um die entsprechenden Laserparameter zu gewährleisten. Damit stellen die Experimente die bisher umfangreichsten Untersuchungen zur EUV-Emission eines Xe-Cluster-Targets in Abhängigkeit der Laserparameter dar. Anders als beim Wasserjet zeigte sich, dass das Target in einem relativ großen Intensitäts- und Pulsdauerfenster mit hohen Konversionseffizienzen betrieben werden kann. Sowohl mit einem 10 ns Laserpuls und 10^{14} W/cm^2 erreicht man eine Effizienz von ca. 0,3% ($2\pi\text{sr}$) als auch mit einem 2 ps und 50 fs Puls und $5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ bzw. $2 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$. Ursache für die hohe Effizienz bei Verwendung von Laserpulsen mit einer Pulsdauer länger als die Clusterexpansionszeit ist die hohe mittlere Atomdichte. Bei Laserpulsen mit einer kürzeren Pulsdauer führt die Anwesenheit von Clustern maßgeblich zu einer starken Emission im weichen Röntgenbereich, die EUV-Emission wird allerdings nicht negativ beeinflusst. Eine gemessene Konversionseffizienz bei 13,4 nm Wellenlänge von 0,8% ($2\pi\text{sr}$, 2,2% BW), der höchste in der Literatur beschriebene Wert an einem Xe-Cluster oder Gaspuls-Target, wurde mit einem zirkular polarisierten 2 ps-Laserpuls erzielt. Ein großes Problem des Gaspuls-Targets ist jedoch die Absorption der EUV-Strahlung, die ein Erreichen von noch höheren Konversionseffizienzen schwierig macht. Daher richten sich die Hoffnungen aktuell auf einen flüssigen Xenonjet als Target, wobei in diesem Zusammenhang die Stabilitätsuntersuchungen am Wasserjettarget unter Benutzung hoher mittlerer Laserleistungen von großem Interesse sind.

8.2. Laserplasmaquelle für ein Absorptionsspektrometer

In einem weiteren Kapitel ist der Aufbau eines Röntgenabsorptionsspektrometers beschrieben. Während die Röntgenabsorptionsspektroskopie eine an Synchrotronquellen verbreitete Untersuchungsmethode ist, existiert zunehmend die Nachfrage nach Laborspektrometern, die dem Anwender einen permanenten Zugang ermöglichen. Besonders für Untersuchungs-

8.3. Laserplasmen zur Erzeugung harter Röntgenstrahlung

objekte aus der Biologie ist dies aufgrund der komplizierten und häufig zu wiederholenden Probenpräparation ein großer Vorteil. Zudem erscheint die Möglichkeit von zeitaufgelösten Messungen auf der Basis eines Pump-Probe Schemas an einer laserinduzierten Laborquelle relativ einfach realisierbar zu sein. Dies stellte auch einen wichtigen Eckparameter bei der Auswahl des Lasers dar, die Röntgenpulsdauer sollte möglichst kurz sein. Die Wahl fiel wiederum auf den burst-mode Laser mit der kürzest möglichen Pulsdauer von 25 ps. Eine Optimierung der Intensität konnte daher nur über eine Variation der Repetitionsrate erfolgen. Nachdem in einer Reihe von Experimenten ein geeignetes Festkörper-Targetmaterial (Kupfer) und die optimale Lasereinstellung (Intensität $1,6 \cdot 10^{14}$ W/cm², mittlere Leistung 1 W) für maximale Photonenzahlen gefunden wurde, ermittelten weiterführende Messungen die Größe und Ortsstabilität (24 ± 3 μ m in vertikaler und 37 ± 3 μ m in horizontaler Richtung) der Kupfer-Plasmaquelle im Röntgenbereich und die Emissionsdauer (44 ± 7 ps). Aufgrund der Resultate erschien die Quelle für ein Absorptionsspektrometer geeignet, was in ersten Messungen dokumentiert werden konnte. So wurden statische Absorptionsspektren an der Kohlenstoff-K-Kante (4,38 nm) von PET, TAP und β -Carotin aufgenommen.

8.3. Laserplasmen zur Erzeugung harter Röntgenstrahlung

Zunehmend werden Laserplasmen auch für die Erzeugung von härterer Röntgenstrahlung im Bereich einiger keV verwendet. Um Emission in diesem Bereich zu erhalten, muss man eine Intensität von $>10^{16}$ W/cm² erzeugen, was meistens durch die Verwendung eines fs-Laserpulses geschieht. Der Ti:Sa-Laser ist daher der Standardlaser für derartige Quellen. Neben den Systemen, die auf die Erzielung höchster Intensitäten ($>10^{19}$ W/cm²) ausgerichtet sind und Repetitionsraten um die 10 Hz besitzen, existieren Laser mit kHz-Repetitionsraten, aber geringeren Intensitäten. In einem Experiment mit einem Gold- und Kupfertarget, beschrieben im letzten experimentellen Kapitel dieser Arbeit, konnte gezeigt werden, dass diese Laser für die Erzeugung harter Röntgenstrahlung (charakteristischer K-Strahlung und Bremsstrahlung) geeignet sind. Um eine möglichst hohe Photonenausbeute zu bekommen, muss wieder eine Optimierung der Laserintensität erfolgen.

Da in der Regel Festkörpermaterialien als Target Verwendung finden, ist die Frage nach Debris von entscheidender Bedeutung. Überlegungen gehen daher in Richtung debrisarmer Jettargets aus flüssigem Metall und Gas-Kryojet-Targets. Problematisch bei der Realisierung eines solchen Targets ist allerdings die Tatsache, dass die meisten in Frage kommenden Metalle einen hohen Schmelzpunkt besitzen und so die Konstruktion einer Düse technisch anspruchsvoll ist. In einem ersten Experiment konnte die Erzeugung eines flüssigen Gallium-Jets gezeigt und mit einem kHz-Laser ein Plasma auf dem Jet erzeugt werden, dessen Spektrum im harten Bereich gemessen wurde. Tatsächlich ist ein Metalljet ein mögliches Target, das auch ein deutlich gemindertes Debris zeigt. Weiterführende Experimente sind notwendig, um das Target für eine Anwendung nutzen zu können.

Das begonnene Jahrhundert wird in der Physik häufig als das „Jahrhundert des Photons“ bezeichnet. Dies meint, dass die Optik und deren Anwendungen für die technische und indu-

8. Zusammenfassung und Ausblick

strielle Entwicklung (z.B. in der Telekommunikation) eine große Rolle spielen werden. Dabei ist auch ein genereller Trend in Richtung der Verwendung von kürzerwelliger Strahlung im EUV- und Röntgenbereich zu erwarten. Laserinduzierte Plasmen als Laborröntgenquellen stellen dabei eine kostengünstige Möglichkeit dar, diesen Spektralbereich der Röntgenstrahlung einer breiten Masse von Anwendern zugänglich machen. Daher sind Laserplasmen nach wie vor hochinteressante Forschungsobjekte, und in der vorliegenden Arbeit wurde der Versuch unternommen, durch systematische Untersuchung der Röntgenemission das Verständnis über laserinduzierte Plasmen zu verbessern.

A. Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit

- U. Vogt, H. Stiel, I. Will, M. Wieland, T. Wilhein, P.V. Nickles und W. Sandner
Scaling-up a liquid water jet laser plasma source to high average power for extreme ultraviolet lithography
Emerging Lithographic Technologies III, Proceedings of SPIE **4343**, 535–542, 2001
- M. Beck, U. Vogt, I. Will, A. Liero, H. Stiel, W. Sandner und T. Wilhein
A pulse train laser driven XUV source for picosecond pump-probe experiments in the water window
Optics Communications **190**, 317–326, 2001
- U. Vogt, H. Stiel, I. Will, P. V. Nickles, W. Sandner, M. Wieland und T. Wilhein
Influence of laser intensity and pulse duration on the extreme ultraviolet yield from a water jet target laser plasma
Applied Physics Letters **79**, Nr. 15, 2336–2338, 2001
- P.V. Nickles, M. Schnürer, H. Stiel, U. Vogt, S. Ter-Avetisyan, W. Sandner
Absolute EUV yield of laser-irradiated Xe-clusters dependent on pulse width
Applications of X Rays Generated from Lasers and Other Bright Sources II, Proceedings of SPIE **4504**, 106–113, 2001
- M. Beck, H. Stiel, D. Leupold, B. Winter, D. Pop, U. Vogt, C. Spitz
Evaluation of the energetic position of the lowest excited singlet state of β -carotene by NEXAFS and photoemission spectroscopy
Biochimica et Biophysica Acta **1506**, 260–267, 2001
- S. Ter-Avetisyan, M. Schnürer, H. Stiel, U. Vogt, W. Radloff, W. Karpov, W. Sandner, P.V. Nickles
Absolute extreme ultraviolet yield from femtosecond-laser-excited Xe clusters
Physical Review E **64**, 036404, 2001
- M. Schnürer, S. Ter-Avetisyan, H. Stiel, U. Vogt, W. Radloff, M. Kalashnikov, W. Sandner, P.V. Nickles
Influence of laser pulse width on absolute EUV-yield from Xe-clusters
The European Physical Journal D **14**, 331–335, 2001
- G. Korn, A. Thoß, H. Stiel, U. Vogt, M. Richardson, T. Elsässer, M. Faubel
Ultrashort 1-kHz laser plasma hard x-ray source
Optics Letters **27**, Nr. 10, 866–868, 2002

A. Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit

B. Lebenslauf

Ulrich Vogt

Persönliche Daten

Geburtsdatum: 24.06.1974
Geburtsort: Osnabrück
Staatsangehörigkeit: Deutsch
Familienstand: ledig

Schulbildung

1980–1984 Grundschole Osnabrück-Haste
1984–1986 Orientierungsstufe Thomas-Morus-Schule, Osnabrück
1986–1993 Gymnasium Carolinum, Osnabrück
1993 Abitur, Gymnasium Carolinum, Osnabrück

Zivildienst

1993–1994 Caritas Sozialstation Osnabrück

Studium der Physik

WS 1994/95–SS 1996 Universität Osnabrück
August 1996 Vordiplom, Universität Osnabrück
WS 1996/97–SS 1999 Georg-August-Universität Göttingen
Mai 1999 Diplom, Georg-August-Universität Göttingen
Thema der Diplomarbeit:
Laserinduziertes Plasma als Strahlungsquelle
für weiche Röntgenstrahlung
August 1999 Beginn der Promotion bei Prof. Sandner an
der Technischen Universität Berlin und dem
Max-Born-Institut, Berlin

C. Danksagung

Ich möchte mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. An erster Stelle ist dabei Herr Prof. Dr. W. Sandner zu nennen, der mir die Möglichkeit gegeben hat, am Max-Born-Institut zu arbeiten und die exzellenten Forschungsbedingungen nutzen zu können. Seine Art und Weise, komplexe physikalische Vorgänge mit Hilfe von einfachem Grundlagenwissen zu erklären, war für mich faszinierend und lehrreich zugleich.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. H. Stiel für die freundschaftliche Betreuung dieser Arbeit. Selten habe ich eine so große und nimmermüde Hilfsbereitschaft erlebt. Auch alle anderen Mitarbeiter des Max-Born-Instituts, mit denen ich während der letzten drei Jahre zusammengearbeitet habe, haben sich durch eine sehr gute Kollegialität ausgezeichnet. Dabei sind insbesondere zu nennen:

- Herr Dipl. Phys. M. Beck, mit dem zusammen ich die Messungen zur Charakterisierung des Laserplasmas für ein Laborspektrometer vorgenommen und zahlreiche interessante Diskussionen geführt habe
- Herr Dr. M. Schnürer und Herr Dr. S. Ter-Avetisyan, mit denen zusammen ich einige Messungen an Xenon-Clustern gemacht habe und die mir jederzeit für fachliche Fragen und Diskussionen zur Verfügung standen
- Herr Dr. I. Will für die Bereitstellung des Nd:YLF Lasers
- für die interessante Messkampagne am Gallium-Jet Herr Dr. G. Korn, Herr Dr. M. Faubel und Herr Dipl. Phys. A. Thoß
- mein Abteilungsleiter Herr Dr. P. V. Nickles
- unser Feinmechaniker Herr K. Föllmer, der großen Anteil an der Realisierung so manchen Versuchsaufbaus hatte
- Frau M. Moldenhauer, deren permanente Unterstützung in technischen Dingen ich mir sicher sein konnte

Abschließend möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. T. Wilhein bedanken, der mich nach der Diplomarbeit dazu ermuntert hat, am MBI anzufangen. Durch die Zusammenarbeit im EUV-Projekt zum Wasserjettarget und durch meinen Gastaufenthalt in Remagen ist der wissenschaftliche Kontakt nie abgebrochen. Das gilt auch für meinen Studienkollegen Herrn Dipl. Phys. M. Wieland, mit dem zusammen ich die ein oder andere Frage sowohl wissenschaftlicher als auch technischer Art diskutieren konnte.

C. Danksagung

Literaturverzeichnis

- [Att00] ATTWOOD, D.: *Soft x-rays and extreme ultraviolet radiation*. Cambridge University Press, Cambridge, 2000.
- [BCK91] BALDIS, H.A., E.M. CAMPBELL und W.L. KRUEER: *Laser plasma interaction*. In: RUBENTCHIK, A. und S. WITKOWSKI (Herausgeber): *Handbook of Plasma Physics*, Band 3, Physics of laser plasmas. North Holland, Amsterdam, 1991.
- [BDH⁺88] BRETON, C., C. DEMICHELIS, W. HECQ, M. MATTIOLI, J. RAMETTE und B. SAOUTIC: *Highly ionized xenon spectra (95-260 Å) excited in TFR Tokamak plasmas*. *Physica Scripta*, 37:33–37, 1988. sub27sti.
- [BDO00] BENSHP, J.P.H., U. DINGER und D.C. OCKWELL: *Euclides: First phase completed!* In: DOBISZ, E. A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies IV, Proceedings of SPIE 3997*. SPIE, 2000.
- [Bec02] BECK, M.: *Charakterisierung einer XUV-Laserplasmaquelle und ihre Anwendung in der NEXAFS-Spektroskopie an organischen Molekülen*. Doktorarbeit, Max-Born-Institut, Berlin, 2002.
- [BMB⁺93] BELL, A.J., J.M. MESTDAGH, J. BERLANDE, X. BIQUARD, J. CUVELLIER, A. LALLEMENT, P. MEYNADIER, O. SUBLEMONTIER und J.-P. VISTICOT: *Mean cluster size by Rayleigh scattering*. *J. Phys. D*, 26:994–996, 1993.
- [BMH85] BARBEE, T., S. MROWKA und M.C. HETRICK: *Molybdenum-silicon multilayer mirrors for the extreme ultraviolet*. *Appl. Optics*, 24(6):883–886, 1985.
- [BOS95] BENDER, H.A., D.O. O'CONNELL und W.T. SILFVAST: *Velocity characterization of particulate debris from laser-produced plasmas used for extreme-ultraviolet lithography*. *Appl. Optics*, 34(28):6513–6521, 1995.
- [BR85] BOYER, K. und C.K. RHODES: *Atomic inner-shell excitation induced by coherent motion of outer-shell electrons*. *Phys. Rev. Lett.*, 54(14):1490–1493, 1985.
- [BRH96] BERGLUND, M., L. RYMELL und H.M. HERTZ: *Ultraviolet prepulse for enhanced x-ray emission and brightness from droplet-target laser plasmas*. *Appl. Phys. Lett.*, 69:1683–1685, 1996.

Literaturverzeichnis

- [BRHW98] BERGLUND, M., L. RYMELL, H.M. HERTZ und T. WILHEIN: *Cryogenic liquid-jet target for debris-free laser-plasma soft x-ray generation*. Rev. Sci. Instrum., 69(6):2361–2364, 1998.
- [BS00] BAGNOUD, V. und F. SALIN: *Amplifying laser pulses to the terawatt level at a 1-kilohertz repetition rate*. Appl. Phys. B, B20 (Suppl.):165–170, 2000.
- [BSL⁺01] BECK, M., H. STIEL, D. LEUPOLD, B. WINTER, D. POP, U. VOGT und C. SPITZ: *Evaluation of the energetic position of the lowest excited state of beta-carotene by NEXAFS and photoemission spectroscopy*. Biochimica et Biophysica Acta, 1506:260–267, 2001.
- [BW80] BORN, M. und E. WOLF: *Principles of optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 6 Auflage, 1980.
- [DBM⁺99] DORON, R., E. BEHAR, P. MANDELBAUM, J.L. SCHWOB, H. FIEDOROWICZ, A. BARTNIK, R. JAROCKI, M. SZCZUREK und T. WILHEIN: *Spectroscopic signature of strong dielectronic recombination in highly ionized xenon produced by irradiating a gas puff with laser*. Phys. Rev. A, 59(1):188–194, 1999.
- [DDR⁺96] DITMIRE, T., T. DONNELLY, A.M. RUBENCHIK, R.W. FALCONE und M.D. PERRY: *Interaction of intense laser pulses with atomic clusters*. Phys. Rev. A, 53(5):3379–3402, 1996.
- [Dob01] DOBISZ, E.A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies V*, Band 4343 der Reihe *Proceedings of SPIE*. SPIE, 2001.
- [DSZ⁺01] DÜSTERER, S., H. SCHWOERER, W. ZIEGLER, C. ZIENER und R. SAUERBREY: *Optimization of EUV radiation yield from laser-produced plasma*. Appl. Phys. B, 73:693–698, 2001.
- [EPF⁺00] EDER, D.C., G. PRETZLER, E.E. FILL, K. EIDMANN und A. SAEMANN: *Spatial characteristics of the k-alpha radiation from weakly relativistic laser plasmas*. Appl. Phys. B, 70:211–217, 2000.
- [ES91] EIDMANN, K. und W. SCHWANDA: *Conversion of laser light into soft X rays with 3-ns and 30-ps laser pulses*. Laser and Particle Beams, 9(2):551–562, 1991.
- [Fau00] FAUBEL, M.: *Photoelectron Spectroscopy at liquid surfaces*. In: NG, Y.C. (Herausgeber): *Photoionization and Photodetachment*. World Scientific, Singapur, 2000.
- [FBD⁺00] FIEDOROWICZ, H., A. BARTNIK, H. DAIDO, I.W. CHOI, M. SUZUKI und S. YAMAGAMI: *Strong extreme ultraviolet emission from a double-stream xenon/helium gas puff target irradiated with a Nd:YAG laser*. Opt. Commun., 184:161–167, 2000.

- [FBPP93] FIEDOROWICZ, H., A. BARTNIK, Z. PATRON und P. PARYS: *X-ray emission from laser-irradiated gas puff targets*. Appl. Phys. Lett., 62(22):2778–2780, 1993.
- [FBS⁺99] FIEDOROWICZ, H., A. BARTNIK, M. SZCZUREK, H. DAIDO, N. SAKAYA, V. KMETIK, Y. KATO, M. SUZUKI, M. MATSUMURA, J. TAJIMA, T. NAKAYAMA und T. WILHEIN: *Investigation of soft x-ray emission from a gas puff target irradiated with a Nd:YAG laser*. Opt. Commun., 163:103–114, 1999.
- [FFRT86] FARGES, J., M.F. FERAUDY, B. RAOULT und G. TORCHET: *Noncrystalline structure of argon clusters. II. Multilayer icosahedral structure of Ar_N clusters 50 < N < 750*. J. Chem. Phys., 84(6):3491–3501, 1986.
- [FHN⁺99] FUJIMOTO, Y., Y. HIRONAKA, K.G. NAKAMURA, K. KONDO, M. YOSHIDA, M. OHTANI und H. TSUNEMI: *Spectroscopy of hard x-rays (2–15keV) generated by focussing femtosecond laser on metal targets*. Jpn. J. Appl. Phys., 38:6754–6756, 1999.
- [FKL12] FRIEDERICH, W., P. KNIPPING und M.V. LAUE: *Interferenzerscheinungen bei Röntgenstrahlen*. Sitzungsberichte der Kgl. Preuß. Akademie der Wissenschaften, Seiten 303–312, 1912.
- [FMU⁺01] FEURER, T., A. MORAK, I. USCHMANN, Z. CH., H. SCHWOERER, E. FÖRSTER und R. SAUERBREY: *An incoherent sub-picosecond X-ray source for time-resolved X-ray-diffraction experiments*. Appl. Phys. B, 72:15–20, 2001.
- [GRPJ⁺97] GUO, T., C. ROSE-PETRUCK, R. JIMENEZ, F. RAKSI, J. SQUIER, B. WALKER, K.R. WILSON und C.P.J. BARTY: *Picosecond-milliångstrom resolution dynamics by ultrafast x-ray diffraction*. SPIE, 3157:84–92, 1997.
- [GSWB01] GUO, T., C. SPIELMANN, B.C. WALKER und C.P.J. BARTY: *Generation of hard x-rays by ultrafast terawatt lasers*. Rev. Sci. Instrum., 72(1):41–47, 2001.
- [Gula] GULLIKSON, E.M.: *X-ray transmission of a gas*. http://www-cxro.lbl.gov/optical_constants/gastrn2.html.
- [Gulb] GULLIKSON, E.M.: *X-ray transmission of a solid*. http://www-cxro.lbl.gov/optical_constants/filter2.html.
- [Gut86] GUTTMANN, P.: *Untersuchungen an Detektorsystemen zur Verarbeitung hoher Photonenraten im Bereich ultraweicher Röntgenstrahlung*. Doktorarbeit, FE Röntgenphysik, Universität Göttingen, 1986.
- [GV95] GERTHSEN, C. und H. VOGEL: *Physik*. Springer, Berlin, Heidelberg, 18. Auflage, 1995.
- [Hae31] HAENLEIN, A.: *Über den Zerfall eines Flüssigkeitsstrahls*. Forsch. a. d. Gebiet d. Ingenieurw., 4:139–149, 1931.

Literaturverzeichnis

- [Hag81] HAGENA, O.F.: *Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows*. Surface Science, 106:101–116, 1981.
- [Hag92] HAGENA, O.F.: *Cluster ion sources*. Rev. of Sci. Instrum., 63(4):2374–2379, 1992.
- [Ham97] HAMBACH, D.: *Elektronenstrahlolithographische Herstellung von Reflexionszonenplatten für die Plasmadiagnostik im weichen Röntgenbereich*. Diplomarbeit, FE Röntgenphysik, Universität Göttingen, 1997.
- [HBHH00] HANSSON, B.A.M., M. BERGLUND, O. HEMBERG und H.M. HERTZ: *Xenon liquid-jet laser-plasma source for EUV lithography*. In: DOBISZ, E. A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies IV, Proceedings of SPIE 3997*, Seiten 729–732. 2000.
- [Hüf96] HÜFNER, S.: *Photoelectron Spectroscopy*. Springer, Berlin, 2. Auflage, 1996.
- [HM00] HONDA, H. und E. MIURA: *Evidence for wavelength dependence of Xe M-shell emission from clusters*. Phys. Rev. A, 61:023201 1–4, 2000.
- [HO72] HAGENA, O.F. und W. OBERT: *Cluster formation in expanding supersonic jets: Effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas*. The Journal of Chemical Physics, 56(5):1793–1802, 1972.
- [Hor91] HORA, H.: *Plasmas at High Temperature and Density*, Band 1 der Reihe *Springer series m: Monographs*. Springer, Berlin, 1991.
- [HR98] HETTWER, M. und D. RUDOLPH: *Fabrication of the X-ray condensor zone plate KZP7*. In: THIEME, J., G. SCHMAHL, D. RUDOLPH und E. UMBACH (Herausgeber): *X-ray microscopy and spectromicroscopy*. Springer, Heidelberg, 1998.
- [HRBH00] HANSSON, B.A.M., L. RYMELL, M. BERGLUND und H.M. HERTZ: *A liquid-xenon-jet laser-plasma x-ray and EUV source*. Microelectronic engineering, 53:667–670, 2000.
- [HRBM95] HERTZ, H.M., L. RYMELL, M. BERGLUND und L. MALMQVIST: *Debris-free soft x-ray generation using a liquid droplet laser-plasma target*. In: RICHARDSON, M. und G.A. KYRALA (Herausgeber): *Applications of laser plasma radiation II, Proceedings of SPIE 2523*, Seiten 88–93. SPIE, 1995.
- [Hut87] HUTCHINSON, I.H.: *Principles of plasma diagnostics*. Cambridge University Press, Cambridge, New York, 1987.
- [HW94] HAKEN, H. und C.E. WOLF: *Molekülphysik und Quantenchemie*. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2. Auflage, 1994.
- [IW95] IKETAKI, Y. und T. WATANABE: *X-ray microscopy using the photoexcitation to unoccupied pi-character molecular orbitals*. Rev. Sci. Instrum., 66(2):982–986, 1995.

- [JBE⁺01] JOHANSSON, G.A., M. BERGLUND, F. ERIKSSON, J. BIRCH und H.M. HERTZ: *Compact soft x-ray reflectometer based on a line-emitting laser-plasma source*. Rev. Sci. Instrum., 72(1):58–62, 2001.
- [JRST95] JIN, F., M. RICHARDSON, G. SHIMKAVEG und D. TORRES: *Characterization of a laser plasma water droplet EUV source*. In: RICHARDSON, M. und G.A. KYRALA (Herausgeber): *Applications of laser plasma radiation II, Proceedings of SPIE 2523*, Seiten 81–87. SPIE, 1995.
- [JTT⁺94] JASNY, J., U. TEUBNER, W. THEOBALD, C. WÜLKER, J. BERGMANN und F.P. SCHÄFER: *A single-shot spectrograph for the soft x-ray region*. Rev. Sci. Instrum., 65(5):1631–1635, 1994.
- [KBJ⁺97] KONDO, K., A.B. BORISOV, C. JORDAN, A. MCPHERSON, W.A. SCHROEDER, K. BOYER und C.K. RHODES: *Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters*. J. Phys. B., 30:2707–2716, 1997.
- [KBKS99] KUBIAK, G.D., L.J. BERNARDEZ, K. KRENZ und W.C. SWEATT: *Scale-up of a cluster jet laser plasma source for extreme UV lithography*. In: DOBISZ, E. A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies III, Proceedings of SPIE 3767*, Seiten 669–678. 1999.
- [Kel] KELLY, R.L.: *Kelly Atomic Line Database*. <http://cfa-www.harvard.edu/amdata/ampdata/kelly/kelly.html>.
- [Kel65] KELDYSH, L.V.: *Ionisation in the field of a strong electromagnetic wave*. Sov. Phys. JETP, 20(5):1307, 1965.
- [Ker69] KERKER, M.: *The scattering of light and other electromagnetic radiation*. Academic Press, New York, London, 1969.
- [KKMT01] KUMARAPPAN, V., M. KRISHNAMURTHY, D. MATHUR und L.C. TRIBEDI: *Effect of laser polarization on x-ray emission from Ar clusters in intense laser fields*. Phys. Rev. A, 63:023203, 2001.
- [Kle91] KLEMS, J.H.: *X-ray absorption in valence-excited molecules as a possible contrast mechanism for chemically sensitive imaging and spectroscopy*. Physical Review A, 43(4):2041–2045, 1991.
- [KM01] KRANZUSCH, S. und K. MANN: *Spectral characterization of EUV radiation emitted from a laser-irradiated gas puff target*. Opt. Commun., 200:223–230, 2001.
- [KNS⁺97] KALASHNIKOV, M.P., P.V. NICKLES, M. SCHNÜRER, I. WILL und W. SANDNER: *Multiterawatt hybrid Ti:Sa-Nd:glass dual-beam laser: a novel XUV laser driver*. Opt. Commun., 133:216–220, 1997.

Literaturverzeichnis

- [Kru88] KRUER, W.L.: *The physics of laser plasma interactions*. Addison-Wesley, Redwood City, 1988.
- [Kry93] KRYPEK, M.: *Optische Strahlung und deren Messung*. In: NIEDRIG, H. (Herausgeber): *Bergmann-Schäfer: Lehrbuch der Experimentalphysik*, Band 3, Optik. Walter de Gruyter, Berlin, New York, 1993.
- [KS00] KLOSNER, M.A. und W.T. SILFVAST: *Xenon-emission-spectra identification in the 5–20-nm spectral region in highly ionized xenon capillary-discharge plasmas*. J. Opt. Soc. Am. B, 17(7):1279–1290, 2000.
- [KSB⁺01] KANOUFF, M., H. SHIELDS, L.J. BERNARDEZ, D. CHENOWETH und G.D. KUBIAK: *Absorption of extreme ultraviolet light in a laser produced gas-jet plasma source*. J. Appl. Phys., 90(8):3726–3734, 2001.
- [KTS⁺02] KORN, G., A. THOSS, H. STIEL, U. VOGT, M. RICHARDSON, T. ELSAESSER und M. FAUBEL: *Ultrashort 1kHz laser plasma hard x-ray source*. Opt. Lett., 27(10):866–869, 2002.
- [LB93] L’HUILIER, A. und P. BALCOU: *High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser*. Phys. Rev. Lett., 70(6):774–777, 1993.
- [LBJ⁺01] LEBERT, R., K. BERGMANN, L. JUSCHKIN, O. ROSIER und W. NEFF: *Comparison of different source concepts for EUVL*. In: DOBISZ, E.A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies V, Proc SPIE 4343*. SPIE, 2001.
- [LDNS98] LEZIUS, M., S. DOBOSZ, D. NORMAND und M. SCHMIDT: *Explosion dynamics of rare gas clusters in strong laser fields*. Phys. Rev. Lett., 80(2):261–264, 1998.
- [Leb] LEBERT, R.: *Pinchplasmen als gepulste Röntgenquellen hoher spektraler Strahldichte*. Doktorarbeit.
- [LSWN98] LEBERT, R., G. SCHRIEVER, T. WILHEIN und B. NIEMANN: *Soft x-ray emission of laser-produced plasmas using a low-debris cryogenic nitrogen target*. J. Appl. Phys., 84(6):3419–3421, 1998.
- [Mai60] MAINMAN, T.H.: *Stimulated optical radiation in ruby*. Nature, 187:493, 1960.
- [Mar70] MARCOUX, J.: *Dielectric constants and indices of refraction of Xe, Kr, and Ar*. Canad. J. Phys., 48:244–245, 1970.
- [MBDK01] MEILING, H., J. BENSHP, U. DINGER und P. KÜRZ: *Progress of the EUVL alpha tool*. In: DOBISZ, E.A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies V, Proc SPIE 4343*. SPIE, 2001.
- [McG98] MCGEOCH, M.: *Radio-frequency-preionized xenon z-pinch source for extreme ultraviolet lithography*. Appl. Opt., 37(9):1651–1658, 1998.

- [MHK⁺00] MIURA, E., H. HONDA, K. KATSURA, E. TAKAHASHI und K. KONDO: *Soft x-ray emission from noble gas clusters excited by an ultrashort KrF laser pulse*. Appl. Phys. B, 2000.
- [Mil97] MILGROM, L.R.: *The colours of life*. Oxford University Press, Oxford, New York, Tokyo, 1997.
- [MK94] MAYER-KUCKUCK, T.: *Atomphysik*. Teubner, Stuttgart, 4. Auflage, 1994.
- [MKG93] MACKLIN, J.J., J.D. KMETEC und C.L. GORDON: *High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses*. Phys. Rev. Lett., 70(6):766–769, 1993.
- [MLT⁺93] MCPHERSON, A., T.S. LUK, B.D. THOMPSON, K. BOYER und C.K. RHODES: *Multiphoton-induced x-ray emission and amplification from clusters*. Appl. Phys. B, 57:337–347, 1993.
- [MST⁺01] MORI, M., T. SHIRAISHI, E. TAKAHASHI, H. SUZUKI, L.B. SHARMA, E. MIURA und K. KONDO: *Extreme ultraviolet emission from Xe clusters excited by high-intensity lasers*. J. Appl. Phys., 90(7):3595–3601, 2001.
- [NGL⁺99] NAKANO, H., Y. GOTO, P. LU, T. NISHIKAWA und N. UESUGI: *Time-resolved soft-x-ray absorption spectroscopy of silicon using femtosecond laser plasma x rays*. Appl. Phys. Lett., 75(16):2350–2352, 1999.
- [NSK⁺97] NICKLES, P.V., V.N. SHLYAPTSEV, M.P. KALASHNIKOV, M. SCHNÜRER, I. WILL und W. SANDNER: *Short pulse x-ray laser at 32,6 nm based on transient gain in Ne-like Titanium*. Phys. Rev. Lett., 78(14):2748–2751, 1997.
- [ONK⁺95] OUCHI, I., I. NAKAI, M. KAMADA, S. TANAKA und T. HAGIWARA: *Core electron absorption spectra of poly(ethylene terephthalate) and poly(ethylene 2,6-naphthalate) films*. Polymer Journal, 27(2):127–135, 1995.
- [PAF⁺00] PARRA, E., I. ALEXEEV, J. FAN, K.Y. KIM, S.J. MCNAUGHT und H.M. MILCHBERG: *X-ray and extreme ultraviolet emission induced by variable pulse-width irradiation of Ar and Kr clusters and droplets*. Phys. Rev. E, 62(5):5931–5934, 2000.
- [Per99] PERT, G.J.: *Electron distribution generated by tunneling ionization during gas breakdown by high intensity laser radiation*. J. Phys. B., 32:27–52, 1999.
- [PF97] PRETZLER, G. und E.E. FILL: *Comparison of soft-x-ray spectra from optical-field-ionized plasmas generated with linearly and elliptically polarized femtosecond laser pulses*. Phys. Rev. E, 56(2):2112–2116, 1997.
- [Pue70] PUELL, H.: *Heating of laser produced plasmas generated at plane solid targets*. Z. Naturforsch., 25a:1807–1815, 1970.

Literaturverzeichnis

- [Ray79] RAYLEIGH, L.: *The capillary phenomena of liquid jet*. Proc. Roy. Soc. London, 29:71–79, 1879.
- [Ray99] RAYLEIGH, L.: *On the transmission of light through an atmosphere containing small particles in suspension, and on the origin of the blue sky*. The London, Edinburgh and Dublin Philosophic, Seiten 375–384, 1899.
- [RBH⁺99] REN, Z., D. BOURGEOIS, J.R. HELLIWELL, K. MOFFAT, V. SRAJER und B.L. STODDARD: *Laue crystallography: Coming of age*. J. Synchrotron. Rad., 6:891–917, 1999. sub69sti.
- [RGUF00] REICH, C., P. GIBBON, I. USCHMANN und E. FÖRSTER: *Yield optimization and time structure of femtosecond laser plasma $K\alpha$ sources*. Phys. Rev. Lett., 84(21):4846–4849, 2000.
- [RH93] RYMELL, L. und H.M. HERTZ: *Droplet target for low-debris laser-plasma soft x-ray generation*. Opt. Commun., 103:105–110, 1993.
- [RKK⁺93] RUDD, J.V., G. KORN, S. KANE, J. SQUIER und G. MOUROU: *Chirped-pulse amplification of 55-fs pulses at a 1-kHz repetition rate in a Ti:Al₂O₃ regenerative amplifier*. Opt. Lett., 18(23):2044–2046, 1993.
- [RMBH99] RYMELL, L., L. MALMQVIST, M. BERGLUND und H.M. HERTZ: *Liquid-jet target laser-plasma sources for EUV and x-ray lithography*. Microelectronic engineering, 466:453–455, 1999.
- [Rön96] RÖNTGEN, W.C.: *Über eine neue Art von Strahlen*. Ann. Phys., 64:12–17, 1896.
- [Roc99] ROCCA, J.J.: *Table-top soft x-ray lasers*. Rev. Sci. Instrum., 10:3799–3827, 1999.
- [RPJG⁺99] ROSE-PETRUCK, C., R. JIMENEZ, T. GUO, A. CAVALLERI, C.W. SIDERS, F. RAKSI, J.A. SQUIER, B.C. WALKER, K.R. WILSON und C.P.J. BARTY: *Picosecond-milliångstrom lattice dynamics measured by ultrafast x-ray diffraction*. Nature, 398:310–312, 1999.
- [RPSWB97] ROSE-PETRUCK, C., K.J. SCHAFER, K.R. WILSON und C.P.J. BARTY: *Ultrafast electron dynamics and inner shell ionisation in laser driven clusters*. Phys. Rev. A, 55(2):1182–1190, 1997.
- [RTD⁺98] RICHARDSON, M., D. TORRES, C. DEPRIEST, F. JIN und G. SHIMKAVEG: *Mass-limited, debris-free laser-plasma EUV source*. Opt. Commun., 145:109–112, 1998.
- [RWJ⁺96] RAKSI, F., K.R. WILSON, Z. JIANG, A. IKHELF, Y. COTE und J.-C. KIEFFER: *Ultrafast x-ray absorption probing of a chemical reaction*. J. Chem. Phys., 104(15):6066–6068, 1996.

- [SBC96] SNYDER, E.M., S.A. BUZZA und A.W. CASTLEMAN: *Intense field-matter interactions: multiple ionization of clusters*. Phys. Rev. Lett., 77(16):3374–3350, 1996.
- [Sch00a] SCHÄFERS, F.: *Multilayers for the EUV/ soft x-ray range*. Physica B, 283:119–124, 2000.
- [SCH⁺00b] SCHNÜRER, M., Z. CHENG, M. HENTSCHEL, F. KRAUSZ., T. WILHEIN, D. HAMBACH, G. SCHMAHL, M. DRESCHER, Y. LIM und U. HEINZMANN: *Few-cycle-driven XUV laser harmonics: generation and focussing*. Appl. Phys. B, 70:227–232, 2000.
- [SCL⁺97] SARTANIA, S., Z. CHENG, M. LENZNER, G. TEMPEA, C. SPIELMANN, F. KRAUSZ und K. FERENCZ: *Generation of 0.1-TW 5-fs optical pulses at a 1-kHz repetition rate*. Opt. Lett., 22(20):1562–1564, 1997.
- [SJL⁺00] SHAN, J., W. JUSHUO, L. LI, N. ZHAO und T. KUANG: *The excitation energy transfer between beta-Car and Chla molecules in PSII core antenna complexes CP43 and CP47*. Chin. Sci. Bull., 45:1579–1583, 2000.
- [SLB⁺01] STIEL, H., D. LEUPOLD, M. BECK, I. WILL, H. LOCKSTEIN und W. SANDNER: *Towards time resolved, coupled structure-function information on carotenoid excited state process: X-ray and optical short pulse double resonance spectroscopy*. Biochemical and Biophysical Methods, 48:239–246, 2001.
- [SM85] STRICKLAND, D. und G. MOUROU: *Compression of amplified chirped optical pulses*. Opt. Commun., 56(3):219–221, 1985.
- [SMK02] SHIRAISHI, T., M. MORI und K. KONDO: *Estimation of the pulse width of x-ray emission from Xe clusters excited by a subpicosecond intense Ti:sapphire laser pulse*. Phys. Rev. A, 64:045201, 2002.
- [SMN⁺98] SCHRIEVER, G., S. MAGER, A. NAWEED, A. ENGEL, K. BERGMANN und R. LEBERT: *Laser-produced lithium plasma as a narrow-band extended ultraviolet radiation source for photoelectron spectroscopy*. Appl. Opt., 37(7):1243–1248, 1998.
- [Sor95] SORET, J.: *Über die durch Kreisgitter erzeugten Diffraktionsphänomene*. Ann. Phys. und Chem., 156:99, 1895.
- [SSS⁺01] SOUFLI, R., E. SPILLER, M.A. SCHMIDT, J.C. DAVIDSON, R.F. GRABNER, E.M. GULLIKSON, B.B. KAUFMANN, S. MROWKA, S.L. BAKER, H.N. CHAPMAN, R.M. HUDYMA, J.S. TAYLOR, C.C. WALTON, C. MONTCALM und J.A. FOLTA: *Multilayer optics for an extreme ultraviolet lithography tool with 70nm resolution*. In: DOBISZ, E.A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies V, Proc SPIE 4343*. SPIE, 2001.
- [Stö96] STÖHR, J.: *NEXAFS Spectroscopy*, Band 25 der Reihe *Springer Series in Surface Sciences*. Springer, Berlin, Heidelberg, 1996.

Literaturverzeichnis

- [SW92] SEIDEL, J. und B. WENDE: *Plasmen*. In: RAITH, E. (Herausgeber): *Bergmann-Schäfer: Lehrbuch der Experimentalphysik*, Band 5, Vielteilchensysteme. Walter de Gruyter, Berlin, 1992.
- [TASS⁺01] TER-AVETISYAN, S., M. SCHNÜRER, H. STIEL, U. VOGT, W. RADLOFF, W. KARPOV, W. SANDNER und P.V. NICKLES: *Absolute extreme ultraviolet yield from femtosecond-laser-excited Xe clusters*. Phys. Rev. E, 64:036404, 2001.
- [TD99] TURCU, I.C.E. und J.B. DANCE: *X-rays from laser plasmas*. Wiley & Sons Ltd., Chichester, 1999.
- [Tho02] THOSS, A. Doktorarbeit, Max-Born-Institut, Berlin, vorauss. 2002.
- [TJ81] TEO, B.K. und D.C. JOY (Herausgeber): *EXAFS Spectroscopy, Techniques and Applications*. Plenum Press, New York, 1981.
- [TMF⁺98] TOMPKINS, R.J., I.P. MERCER, M. FETTWEIS, C.J. BARNETT, D.R. KLUG, G. PORTER, I. CLARC, S. JACKSON, P. MATOUSEK, A.W. PARKER und M. TOWRIE: *5-20 keV laser-induced x-ray generation at 1 kHz from a liquid-jet target*. Rev. of Sci. Instrum., 69(9):3113–3117, 1998.
- [TRCR⁺01] TICHENOR, D.A., A.K. RAY-CHAUDHURI, W.C. REPLOGLE, S. R.H., G.D. KUBIAK, P.D. ROCKETT, L.E. KLEBANOFF, K.L. JEFFERSON, A.H. LEUNG, J.B. WRONOSKY, L.C. HALE, H.N. CHAPMAN, J.S. TAYLOR, J.A. FOLTA, C. MONTCALM, R. SOUFLI, E. SPILLER, K. BLAEDEL, G.E. SOMMARGREN, D.W. SWEENEY, P. NAULLEAU, K.A. GOLDBERG, E.M. GULLIKSON, J. BOKOR, P. BATSON, D.T. ATTWOOD, K.H. JACKSON, S.D. HECTOR, C.W. GWYN und P.Y. YAN: *System integration and performance of the EUV engineering test stand*. In: DOBISZ, E.A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies V, Proceedings of SPIE 4343*, Seiten 19–37. SPIE, 2001.
- [TSRU98] THIEME, J., G. SCHMAHL, D. RUDOLPH und E. UMBACH (Herausgeber): *X-ray Microscopy and Spectromicroscopy*. Springer, Heidelberg, 1998.
- [UHS⁺97] URQUHART, S.G., A.P. HITCHCOCK, A.P. SMITH, H. ADE und E.G. RIGHTOR: *Inner-shell excitation spectroscopy of polymer and monomer isomers of dimethyl phthalate*. J. Phys. Chem. B, 101:2267–2276, 1997.
- [vdH81] HULST, H.C. VAN DE: *Light Scattering by Small Particles*. Dover Publications, New York, 1981.
- [VDHB99] VISSER, M., M. DEKKER, P. HEGEMANN und J. BRAAT: *Extended-source interferometry for at-wavelength test of EUV-optics*. In: DOBISZ, ELIZABETH A. (Herausgeber): *Emerging Lithographic Technologies III, Proceedings of SPIE 3767*, Seiten 253–263. 1999.

- [Vog99] VOGT, U.: *Laserinduziertes Plasma als Strahlungsquelle für weiche Röntgenstrahlung*. Diplomarbeit, FE Röntgenphysik, Universität Göttingen, 1999.
- [War96] WARK, J.: *Time-resolved x-ray diffraction*. Contemporary Physics, 37(3):205–218, 1996.
- [WBALK85] WYART, J.F., C. BAUCHE-ARNOULT und F. LUC-KOENIG: *Identification of highly-ionized xenon spectra (Xe XXVI Through XXXI) excited in the Plasma of the TFR Tokamak*. Physica Scripta, 32:103–106, 1985. sub26sti.
- [WD80] WINICK, H. und S. DONIACH (Herausgeber): *Synchrotron Radiation Research*. Plenum Press, New York, 1980.
- [Web31] WEBER, C.: *Zum Zerfall eines Flüssigkeitsstrahls*. Z. Angew. Math. Mech., 11:136–154, 1931.
- [WGSM89] WÖRMER, J., V. GUZIELSKI, J. STAPELFELDT und T. MÖLLER: *Fluorescence excitation spectroscopy of xenon clusters in the VUV*. Chem. Phys. Lett., 159(4):321–326, 1989.
- [WHN⁺97] WILHEIN, T., D. HAMBACH, B. NIEMANN, M. BERGLUND, L. RYMELL und H.M. HERTZ: *Off-axis reflection zone plate for quantitative soft x-ray source characterization*. Appl. Phys. Lett., 71(2):190–192, 1997.
- [Wie99] WIELAND, M.: *Kryogene Flüssigkeitsstrahlen als Target einer laserinduzierten Plasmequelle*. Diplomarbeit, Institut für Röntgenphysik, Universität Göttingen, 1999.
- [Wil] WILL, I. *private Mitteilung*.
- [Wil94] WILHEIN, T.: *Gedünnte CCDs: Charakterisierung und Anwendung im Bereich weicher Röntgenstrahlung*. Doktorarbeit, FE Röntgenphysik, Universität Göttingen, 1994.
- [WLMS98] WILL, I., A. LIERO, D. MERTINS und W. SANDNER: *Feedback-stabilized Nd:YLF amplifier system for generation of picosecond pulse trains of an exactly rectangular envelope*. IEEE J. Quantum Electron., 34(10):2020–2028, 1998.
- [Wo152] WOLTER, H.: *Spiegelsysteme streifenden Einfalls als abbildende Optiken für Röntgenstrahlen*. Ann. Phys., 10:94–114, 1952.
- [WRH⁺99] WILHEIN, T., S. REHBEIN, D. HAMBACH, M. BERGLUND, L. RYMELL und H.M. HERTZ: *A slit grating spectrograph for quantitative soft x-ray spectroscopy*. Rev. of Sci. Instrum., 70(3):1694–1699, 1999.
- [WSN⁺97] WULFF, M., F. SCHOTTE, G. NAYLOR, D. BOURGEOIS, K. MOFFAT und G. MOUROU: *Time-resolved structures of macromolecules at the ESRF: Single-pulse Laue diffraction, stroboscopic data collection and femtosecond flash photolysis*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 398:69–84, 1997.

Literaturverzeichnis

- [YFH⁺98] YOSHIDA, M., Y. FUJIMOTO, Y. HIRONAKA, K.G. NAKAMURA, K. KONDO, M. OHTANI und H. TSUNEMI: *Generation of picosecond hard x-rays by terawatt laser focusing on a copper target*. Appl. Phys. Lett., 73(17):2393–2395, 1998.
- [ZDP99] ZWEIBACK, J., T. DITMIRE und M.D. PERRY: *Femtosecond time-resolved studies of dynamics of noble-gas cluster explosions*. Phys. Rev. A, 59(5):3166–3169, 1999.