

基于高次谐波的高功率高稳定 13.5 nm 极紫外光源

李逵^{1,4}, 孟润宇^{2,3}, 李睿暄^{1,4}, 张光银^{1,4}, 姚铭杰⁵, 徐豪¹, 王雨童¹, 李捷^{1,4***}, 张晓世^{1,2**}, 樊仲维^{4*}¹中国科学院空天信息创新研究院, 北京 100094;²云南大学物理与天文学院, 云南 昆明 650216;³中国科学院云南天文台, 云南 昆明 650216;⁴中国科学院大学光电学院, 北京 100049;⁵北京航空航天大学仪器科学与光电工程学院, 北京 100191

摘要 开发了由高重复频率(3 kHz)高能量(3 mJ)钛蓝宝石激光器驱动的极紫外和软 X 射线高次谐波激光光源。该光源系统在 30 nm(光子能量为~45 eV)波长附近实现了大于 120 μW 的平均功率,在 13.46 nm 波长(光子能量为~92 eV)处实现了 1.9 μW 的平均功率,其中在 13.46 nm 波长处带宽为 0.124 nm 的单个谐波实现了 0.32 μW 的平均功率。此外,在该系统中,激光功率连续 12 h 的不稳定性均方根小于 5%,连续 8 h 光束指向均方根小于 10 μrad 。该系统在生物成像、干涉光刻和芯片检测等领域中具有重要应用。

关键词 激光器; 高次谐波; 极紫外激光; 13.5 nm 光源; 软 X 射线; 飞秒激光

中图分类号 O434

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL231507

1 引言

利用紧聚焦飞秒激光脉冲与稀有气体靶材产生高次谐波(HHG)^[1-2]是获得桌面大小且具有极高空间相干性极紫外(EUV)和软 X 射线激光光源的最低成本和简易的方法^[3-5]。HHG 光源具有超宽光谱范围(可覆盖几十 eV 到几 keV)和极短的脉冲宽度(可至阿秒量级),因此 HHG 光源能够在纳米级的空间尺度和阿秒级的时间尺度上探测和研究各类材料和物质^[6-7]。随着飞秒激光技术的飞速发展,基于 HHG 的 EUV 和软 X 射线光源的各项技术指标已经接近甚至超越传统大型自由电子激光器和同步辐射光源。相较于大型光源,HHG 光源成本低、体积小,可实现高空间相干和超短脉冲,具有独特优越性,逐渐成为原子、分子、先进量子等材料研究以及纳米成像的重要光源工具之一^[8-11],并有望将先进科学技术研究推向更多和更高的维度^[12-14]。

微观尺度超快动力学研究需要短波长、短脉冲和高相干度的激光光源,这正是 HHG 光源的最大优势。此外,许多重要元素(如 Cr、Mn、Ni、Co、Fe、Al 和 Si)在 10~20 nm(光子能量为 70~120 eV)光谱范围内都具有很强的特征吸收边,因此该光谱范围的光源也成为研究纳米材料、半导体材料和量子器件的重要工

具^[15-17]。随着极紫外光刻机技术的推广,该光谱范围中的 13.5 nm 光源在半导体领域中的应用尤为重要。目前,小型化且功率较高的 13.5 nm 光源主要以放电或者激光等离子体产生的大发散角度非相干光源为主^[18]。然而,此类光源会产生等离子污染,极大影响了极紫外发光材料及光采集器件的耐久性和稳定性,增加了系统的维护成本^[19]。而大型同步辐射和自由电子激光产生的 13.5 nm 光源成本高,不利于大规模推广应用。基于 HHG 技术的 EUV 光源可以在 10~20 nm 光谱范围内产生较高功率和超高相干度的 EUV 激光,可在半导体光刻领域中实现前沿应用,如微纳尺度的半导体缺陷检测和测量^[20]。目前,国际上已经出现商业化的 13.5 nm HHG 光源,德国 AFS 公司使用平均功率为 75 W 的 1030 nm 激光作为驱动光源,产生的单个 13.5 nm 谐波的平均功率约为 0.7 μW ,缺乏功率稳定性和指向稳定度参数;美国 KMLabs 公司使用平均功率为 9 W 的钛宝石激光器,产生的光子能量在 92 eV 附近的 9 个谐波的平均功率约为 1 μW ,其中波长为(13.5 \pm 0.2) nm 的谐波的平均功率为 0.15 μW ,8 h 指向稳定度为 5 μrad ,8 h 功率稳定度小于 5%。

国内高记星等^[21]利用百太瓦激光系统获得了单次单脉冲能量为 11.5 nJ 的 13.5 nm 谐波。张波等^[22]

收稿日期: 2023-12-11; 修回日期: 2024-01-26; 录用日期: 2024-02-20; 网络首发日期: 2024-02-27

基金项目: 国家重点研发计划(2021YFB3602600)、国家自然科学基金青年科学基金(62005291)、中国科学院项目(GJJ-STD20200009)、北京市科学技术委员会项目(Z221100006722008)

通信作者: *fanzhongwei@aircas.ac.cn; **zhangxiaoshi@itc.ynu.edu.cn; ***lijie430@aircas.ac.cn

基于回声增强高次谐波产生,搭建了双色激光系统,通过模拟得到波长为 5.884 nm 的谐波,但并没有实际产生高通量谐波。戴晨等^[23]利用气体高次谐波进行气相原子分子物理研究,同时还搭建了固体谐波装置,得到了信噪比非常高的谐波,但其波长主要集中在 45 nm 附近。为进一步推进国内 13.5 nm EUV 光源的相关研究与应用,本团队开发了由钛蓝宝石激光器驱动的工程化 13.5 nm HHG 激光光源。采用充气空心光纤波导 HHG 产生技术,成功实现了平均功率高达 0.32 μW 、带宽为 0.124 nm、中心波长为 13.46 nm 的高次谐波激光输出。该光源还实现了小于 1 mrad 的激光发散角,持续 8 h 均方根(RMS)小于 7.5 μrad 的激光指向全角不稳定性,持续 12 h RMS 小于 4.3% 的激光平均功率稳定度。此外,以氙气或氦气作为填充气体,可得到光谱范围覆盖 10~40 nm 的 EUV 输出(对应 20~45 eV 的光子

能量)。

2 实验装置

实验装置的整体结构如图 1 所示,沿光路传播方向依次为钛蓝宝石光源系统、光束稳定控制系统、EUV 发生和过滤系统、EUV 光源检测及光谱仪系统。在钛蓝宝石光源系统中,激光输出中心波长为 794 nm,脉宽为 30 fs,重复频率为 3 kHz,单脉冲能量为 3 mJ。在光束稳定控制系统中,采用一对电控镜反馈调节输入光的位置及指向,保持输入激光的稳定性。在 EUV 发生及过滤系统中,采用两片镀膜反射镜,794 nm 红外光的反射率仅为 10%,13.46 nm 光的反射率高达 80%,随后使用镀膜去除剩余红外光。在 EUV 光源检测及光谱仪系统中,使用组合模块进行功率及稳定性测量,使用平面光栅和轮胎镜及狭缝可获得单个 13.46 nm 谐波。

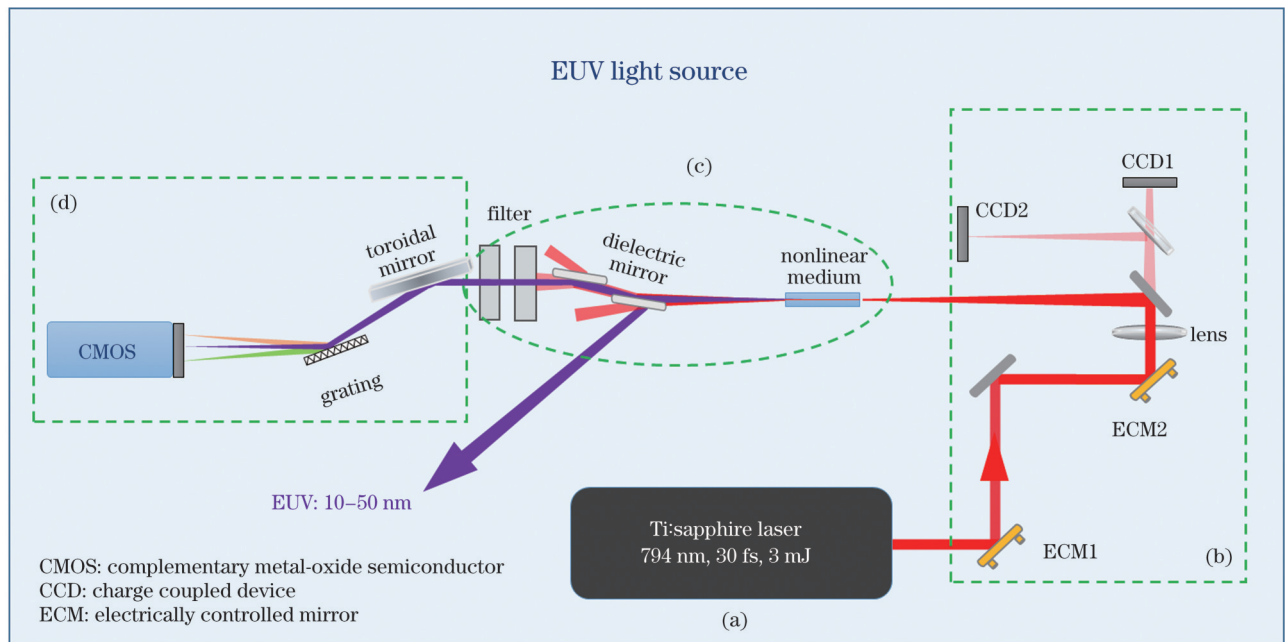


图 1 实验装置示意图。(a)钛蓝宝石光源系统;(b)光束稳定控制系统;(c)EUV 发生及过滤系统;(d)EUV 光源检测及光谱仪系统
Fig. 1 Schematics of experimental setup. (a) Ti: sapphire light source system; (b) beam stability control system; (c) EUV generation and filtration system; (d) EUV light source detection and spectrometer system

2.1 钛宝石光源系统

HHG 过程可用半经典三步模型来解释:1) 在激光的强电场下电子隧穿出原子势阱,原子发生电离;2) 自由电子在电场下获得加速;3) 电场反转后自由电子与母离子有概率重新结合,产生高次谐波。高次谐波光子的截止能量可描述为

$$E_{\text{cutoff}} = I_p + a\lambda^2, \quad (1)$$

式中: E_{cutoff} 为 HHG 截止能量; I_p 为反应气体电离能; a 为常数; I 为驱动激光光场强度; λ 为驱动激光波长。我们使用的钛宝石激光器中心波长为 794 nm,激光脉宽为 30 fs,重复频率为 3 kHz,单脉冲能量可调,最高单脉冲能量为 3 mJ。激光器输出光斑直径约为 10 mm,

选取焦距为 $F=500$ mm 的透镜,根据计算得到焦斑直径约为 56 μm ,焦点平均功率密度约为 4.1×10^{14} W/cm^2 。根据式(1),使用氦气作为发生气体时,对应的光子截止能量为 681 eV。

2.2 光束稳定控制系统

本实验需要将驱动激光紧密聚焦到非线性介质中,同时由于 HHG 过程中的转换效率低,而很多 EUV 应用需要光源维持长期稳定,为避免空气扰动和温度漂移对光路造成影响,非常有必要对驱动光源进行光束稳定控制。在搭建光路时,在驱动激光的同轴光路上,加入了一个单模低功率绿光激光器,作为驱动激光的校准光路,用以标定以及引导光路搭建及调

节,同时也可以用于稳定控制系统的标定。如图 1(b)所示,我们使用两个压电控制镜架对光束指向进行调节,镜架是 x - y 双轴可调的,因此双镜架可实现驱动激光聚焦处的光斑位置及光束指向的调节。实验中使用的 45° (光束入射角)镀膜反射镜对 794 nm 激光的反射率高达 99.8%,这意味着大约有 10 mW 的红外激光会透过反射镜,这部分光可用来进行光束稳定反馈,图 1 中 CCD1 和 CCD2 选取位置等效于波导聚焦光轴上的两个共轴点,实时反馈波导入射光的空间位置。

2.3 EUV 发生及过滤系统

选用焦距为 500 mm 的镀膜聚焦镜将稳定控制后的光束聚焦到特制光纤中,将光束焦点中心置于光纤前段,空芯光纤的耦合约束了驱动激光的光场,使得激光与非线性介质反应之后的 HHG 光源能被高效率调制,从而得到高通量极紫外光源输出,保持较好的光束质量。使用多个真空泵对整个极紫外束线腔体进行气体抽除,保证 HHG 光束传输过程中的真空度小于 10^{-2} Torr (1 Torr=133.32 Pa)。为了避免高功率飞秒驱动脉冲损伤滤光金属薄膜,在光纤和滤波器中间放置两片镀膜条形镜,其对红外光的反射率只有 10%,而在 13.5 nm 处反射率高达 80%,通过两片条形镜后红外光功率约为 100 mW,而 EUV 反射率达到 64%,由此可在尽可能消除红外驱动光的同时得到高的极紫外光源传输效率。同时,将第一块条形镜放置在可旋转镜架上,可以使光路被反射到其他光路,用于其他实验,达到模块化灵活应用的目的。最后用两个金属膜滤波器对共线传播的高次谐波和 794 nm 光束进行过滤,使红外光束完全被过滤掉。

2.4 EUV 光源检测及光谱仪系统

极紫外光源的真空维持及光束分离手段必然导致整个光路的复杂化,而不同的应用场景对谐波光源的需求不一样。为了在应用中方便快捷地对装置进行调整,我们专门设计了模块化结构,即针对每一个特定功能的光学元件设计了具有标准接口的小型腔体装置,在不同应用场景中只需快速切换对应模块即可。针对 HHG 光束质量检测、光束稳定性测量、平均功率测量以及一些不需要分光的应用场景,只需要把光电二极管模块、互补金属氧化物半导体

(CMOS)或样品腔体放置在滤波器后面即可。对于高次谐波的分析应用,明确谐波的光谱分布是必要的,并且在很多实验应用中,我们需要筛选出独立的单次谐波,因此谐波光谱仪是整个装置中必不可少的构件。同时为了获得尽可能高的 EUV 光源通量,保持较高的谐波传输效率显得尤为重要^[24]。在自主设计的谐波光谱仪中我们仅利用两个反射式光学元件:一是使用轮胎镜对 EUV 光束进行聚焦,提高其能量密度分布;二是使用一块平面光栅,对谐波谱进行分光,减少光学元器件的使用能尽量保证小的谐波能量损耗^[25]。在 EUV 焦点处放置一个 CMOS 进行光谱信号采集,具体装置如图 1(d)所示。当需要获得 13.46 nm 单个谐波时,我们可以切换标准化模块,在光谱仪后端接入狭缝,通过过滤获得所需的谐波。

3 实验结果分析

稀有气体是单原子分子,具有较高的电离阈值且电离过程较为简单,因此在气体高次谐波技术中常被用作发生气体。由于氦气具有最高的电离能,根据模拟计算结果得知,当 794 nm 激光作为驱动光源时,13.5 nm 处的转换效率最高,因此选用氦气作为发生气体来获取 13.46 nm 谐波源^[26]。

3.1 光斑及功率测量

在本实验中,使用铯膜或铝膜去除基频红外光,使用光电二极管测量多谐波极紫外光束的平均功率,使用 CMOS 记录光斑形状。图 2 所示为高次谐波光斑及功率测试示意图。其中,图 2(a)为极紫外光功率测试系统及指向稳定性测量系统,图 2(b)为在距离光源 1.9 m 处采集到的谐波光斑图。当使用氦气作为发生气体时,铯膜过滤后的光谱集中分布在 13.46 nm 附近。使用标定过的光电二极管测量光功率信号,在两片不同参数铯膜后测得电信号长时间稳定为 17 nA。考虑到光电二极管的光电转换效率为 0.27 W/A,因此计算得到的平均功率为 63 nW。实测两片铯膜在 13.46 nm 附近的透过率分别为 14.8%、35%,两片反射条形镜的透射率均为 80%,计算得到的光源产生总功率约为 1.9 μ W。为了得到高次谐波的发散角,我们在距离光源 1.9 m 处使用 CMOS 采集光斑形状, $1/e^2$ 光斑尺寸为 1.92 mm \times 1.67 mm,计算得到光斑 x 向发散角

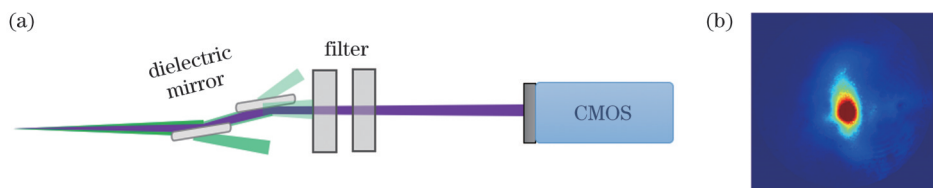


图 2 高次谐波光功率测试示意图。(a)极紫外光功率测试系统及指向稳定性测量系统;(b)在距离光源 1.9 m 处采集到的谐波光斑图
Fig. 2 Schematics of high-order harmonic optical power measurement. (a) EUV light power measurement system and pointing stability measurement system; (b) harmonic spot collected at 1.9 m from light source

为 1.01 mrad, y 向发散角为 0.88 mrad。当使用氩气作为发生气体时,使用两片 250 nm 厚铝膜进行光谱过滤,光谱分布在 30 nm 附近。此时测得光电二极管信号电流值为 230 nA,考虑到两片铝膜的透过率、条形镜的反射率及稀有气体的重吸收,计算得到光源处的平均功率约为 120 μ W。

3.2 稳定性测量

激光光路较长,容易受温度、湿度、空气扰动以及实

验室振动的影响,为了验证稳定系统的控制效果,我们在距离光源 1.9 m 处使用 CMOS 实时记录极紫外光斑中心的位置以及光强信息。图 3 为 CMOS 记录的高次谐波光斑 12 h 的功率稳定情况。我们利用光斑中心 12 h 内相对初始位置的偏移量计算 RMS,其中 x 方向偏移量 RMS 为 11.8 μ m,光束指向偏移量控制在 6.3 μ rad 内, y 方向偏移量 RMS 为 14.0 μ m,光束指向偏移量控制在 7.2 μ rad 内。12 h 平均功率稳定性 RMS 为 4.37%。

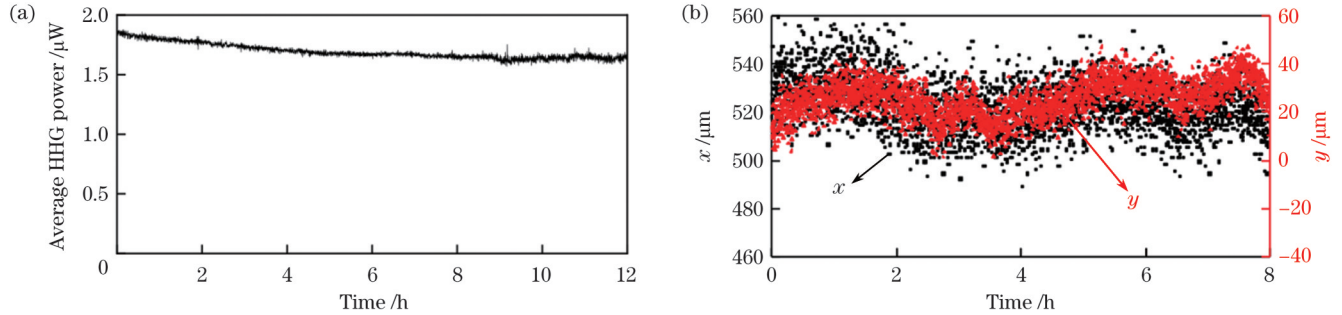


图 3 功率稳定性及指向稳定性测试结果。(a) 12 h 内的光束平均功率曲线;(b) CMOS 采集的 HHG 光斑中心的坐标

Fig. 3 Power stability and pointing stability test results. (a) Average power curve of beam within 12 h; (b) coordinate of center of HHG spot collected by CMOS

3.3 光谱采集分析

高次谐波谱非常宽,覆盖从红外到软 X 射线的奇数次倍频光谱,而很多应用需要过滤驱动激光及

其低倍频谐波。得益于一些金属薄膜对红外光的高吸收(或反射)率和对 EUV 的窄带滤波,单色化模块变得简单。切换装置如图 4(a)所示,使用光谱仪进

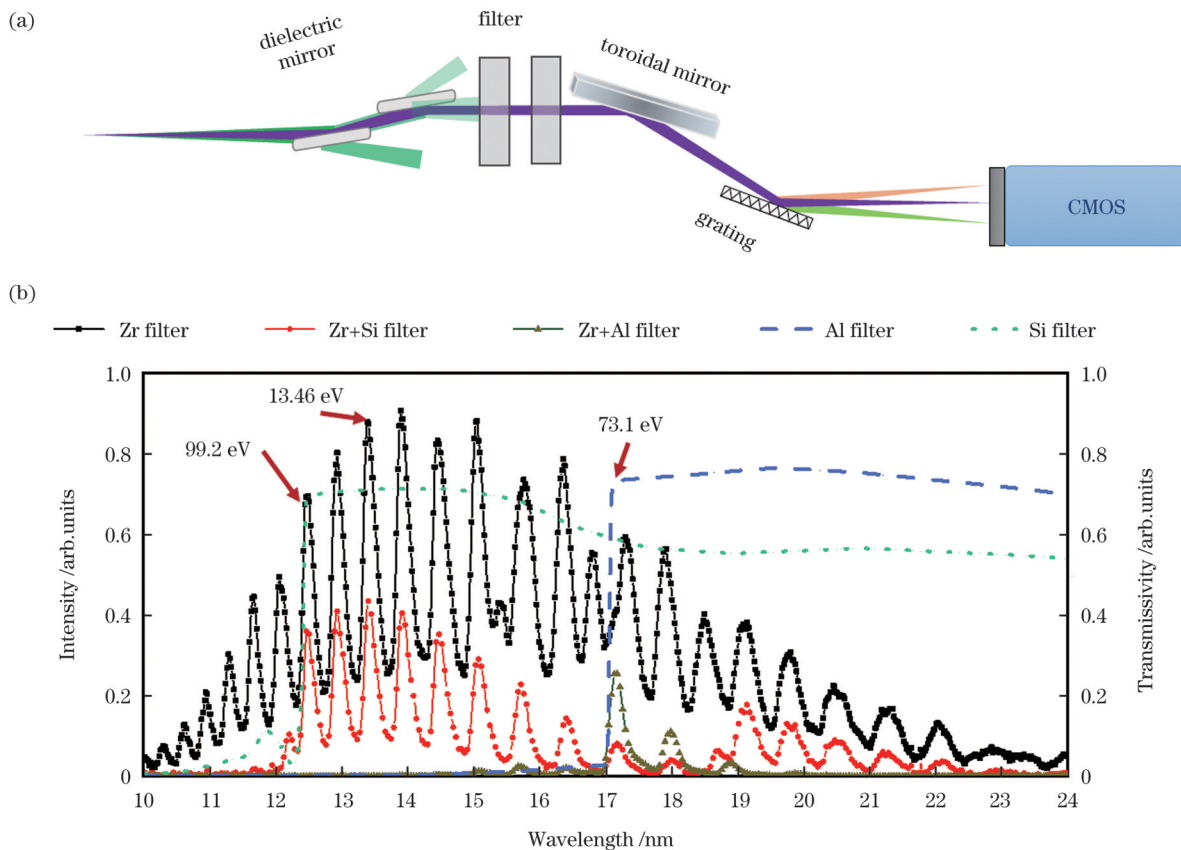


图 4 光谱采集及分析结果。(a)光谱采集装置示意图;(b)刻线密度为 500 line/mm 的光栅的光谱标定分析结果

Fig. 4 Results of spectral acquisition and analysis. (a) Schematic of spectral acquisition device; (b) spectral calibration analysis results of gratings with groove density of 500 line/mm

行光谱测量。许多金属膜在短波区域有着锋锐的吸收边,如图 4(b)中的 200 nm 硅膜和 250 nm 铝膜的吸收曲线所示。硅膜在 12.5 nm 处有一个陡峭吸收边,并且吸收边宽度约为 0.1 nm,这完全可以用来进行光谱标定。794 nm 驱动激光在 13.4 nm 附近产生的谐波分别为:第 57 次谐波(波长为 13.93 nm)、第 59 次谐波(波长为 13.46 nm)、第 61 次谐波(波长为 13.02 nm)。谐波波长间距约为 0.45 nm,间距大于吸收峰宽度,可用来精准标定谐波光谱。同样地,250 nm 铝膜在 17.05 nm 处有一个陡峭吸收峰,并且吸收峰宽度约为 0.05 nm。794 nm 驱动激光在 17.05 nm 附近产生的谐波分别为:第 45 次谐波(波长为 17.64 nm)、第 47 次谐波(波长为 16.90 nm)。谐波波长间距约为 0.74 nm,间距大于吸收峰宽度,可用来精准标定谐波光谱。

为了精确得到 13.46 nm 谐波,我们利用硅膜和铝膜的吸收峰进行双重标定,如图 4(b)所示,使用刻线密度为 500 line/mm 的平面光栅后采集的透过铯膜的 HHG 光谱信号主要包含 10~20 nm 一阶光谱信息。

使用硅膜标定后的光谱,硅膜吸收峰位于 (12.50 ± 0.05) nm,由此得到第 59 次谐波 13.46 nm 峰的位置。同样地,使用铝膜进行标定的光谱,铝膜吸收峰位于 (17.050 ± 0.025) nm,标定出的最强峰为 17.64 nm 的第 45 次谐波。

为了提高光谱分辨率,便于计算 13.46 nm 谐波的功率占比,我们使用刻线密度为 1200 line/mm 的镀金平面光栅进行光谱分离,图 5(a)为 CMOS 探测到的一阶光谱信息,波长覆盖 12~16 nm(一阶衍射谐波谱中波长超过 16 nm 的部分与二阶衍射谐波谱中波长小于 12 nm 的部分有重叠,这里并未给出)。图 5(b)为提取的一级衍射光谱信息,对所有一级衍射光谱进行能量积分,得到 13.46 nm 谐波的功率占比约为 16.8%,其带宽约为 0.124 nm,这里的带宽还受到镀金轮胎镜聚焦的影响,其中包含像差成分,真实带宽会小于 0.124 nm。考虑到前面计算得到的光源处高次谐波整体的功率最大值为 $1.9 \mu\text{W}$,13.46 nm 谐波的平均功率约为 $0.32 \mu\text{W}$ 。

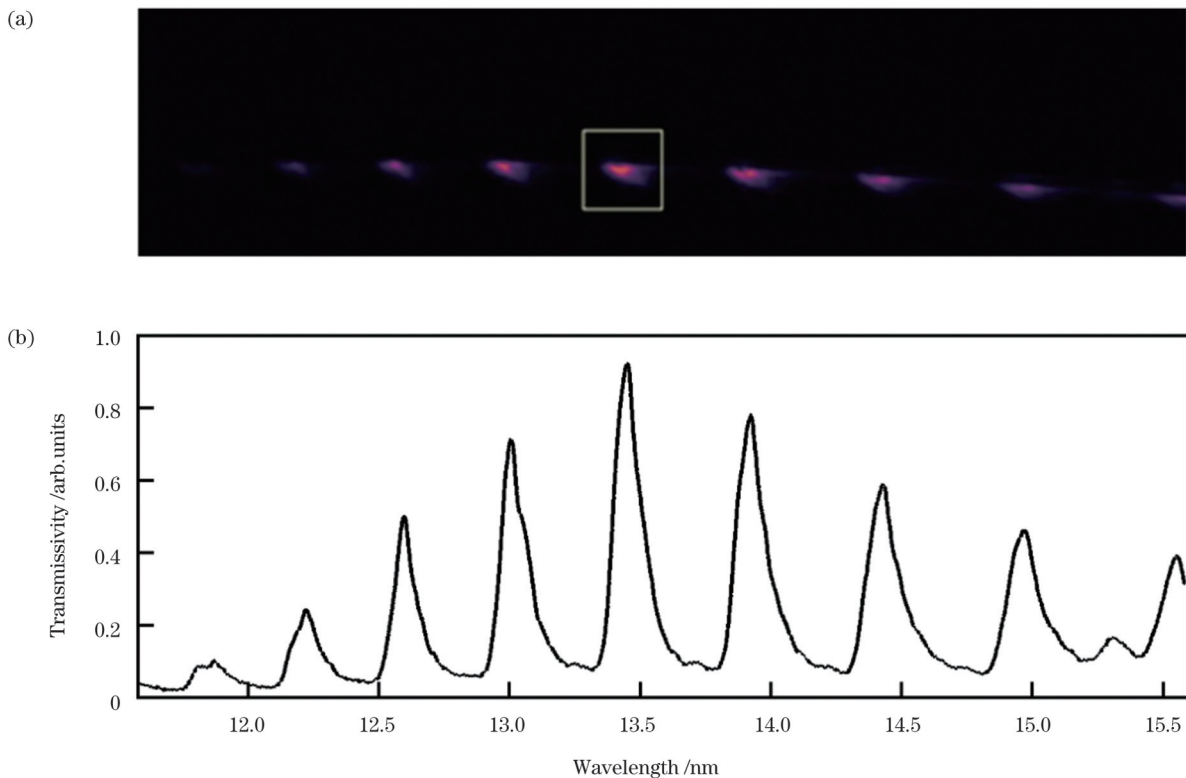


图 5 光栅光谱结果。(a) CMOS 采集到的一阶光谱信息;(b)提取的一阶光谱信息

Fig. 5 Grating spectral results. (a) First-order spectral information collected by CMOS; (b) extracted first-order spectral information

对于刻线密度为 500 line/mm 的平面光栅,当掠入射角为 6° 时,通过耦合模式理论计算得到 13.46 nm 附近光栅的衍射效率: +3 阶衍射效率约为 34%, +2 阶衍射效率约为 29%, +1 阶衍射效率约为 4.3%, 0 阶衍射效率约为 1.9%。对于不同波长谐波谱,我们选择

不同衍射级次,使得到的谐波谱通量最高。图 6 展示了光栅衍射级次分别为 0 阶、+1 阶、+2 阶和 +3 阶时 13.46 nm 谐波波谱的实测结果,其相对强度分别为 0.07、0.16、0.75、0.91,实验结果与理论模拟结果非常吻合。

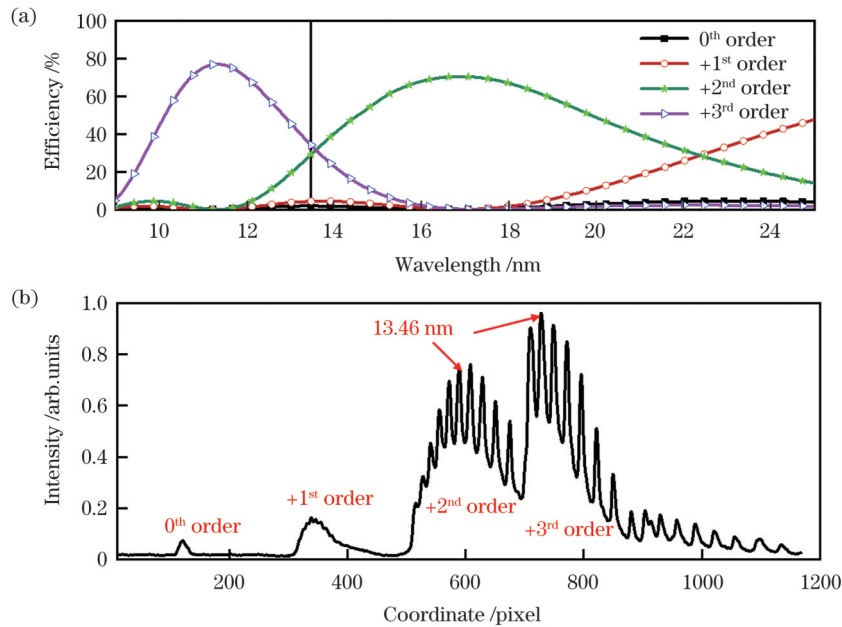


图 6 刻线密度为 500 line/mm 的光栅采集到的 HHG 光谱分布。(a) 理论绝对光栅效率; (b) 实验中测量得到的谐波谱

Fig. 6 HHG spectral distributions acquired by grating with groove density of 500 line/mm. (a) Theoretical absolute grating efficiency; (b) harmonic spectra obtained from measurement

4 结 论

使用钛宝石激光器作为驱动光源,基于充气空心光纤开发了 10~40 nm 高功率高稳定度高次谐波激光光源。使用氦气作为反应气体,在 13.5 nm 附近透过铯膜的多个谐波(10~20 nm 光谱范围)的总平均功率达到 1.9 μW 。通过光路优化,获得了平均功率约为 0.32 μW 、带宽约为 0.124 nm、中心波长为 13.46 nm 的单个谐波。使用氩气作为反应气体,在 30 nm 附近透过铝膜的多个谐波(17~35 nm 光谱范围)获得了 120 μW 的总平均功率。该系统采用了工程化设计,成功实现了该类型光源在指向稳定性和功率稳定性指标的突破,达到了世界领先水平,为该光源在工业领域中的应用和推广打下了坚实的基础。

该光源将在极紫外干涉光刻实验、光刻胶研发、极紫外光刻技术材料参数测量、纳米或量子材料研发以及半导体晶圆缺陷检测等领域中获得应用推广。未来,通过进一步优化高次谐波产生方案,可继续提升光源在 10~20 nm 波段的输出功率,预计可以达到毫瓦量级。

参 考 文 献

- [1] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime[J]. *Physical Review Letters*, 1992, 68(24): 3535-3538.
- [2] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [3] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers[J]. *Science*, 2012, 336(6086): 1287-1291.
- [4] Hädrich S, Rothardt J, Krebs M, et al. Single-pass high harmonic generation at high repetition rate and photon flux[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2016, 49(17): 172002.
- [5] Schoenlein R, Elsaesser T, Holldack K, et al. Recent advances in ultrafast X-ray sources[J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 2019, 377(2145): 20180384.
- [6] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [7] Rothardt J, Tadesse G K, Eschen W, et al. Table-top nanoscale coherent imaging with XUV light[J]. *Journal of Optics*, 2018, 20(11): 113001.
- [8] Kraus P M, Zürich M, Cushing S K, et al. The ultrafast X-ray spectroscopic revolution in chemical dynamics[J]. *Nature Reviews Chemistry*, 2018, 2: 82-94.
- [9] Li J, Lu J, Chew A, et al. Attosecond science based on high harmonic generation from gases and solids[J]. *Nature Communications*, 2020, 11: 2748.
- [10] Cavalieri A L, Müller N, Uphues T, et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter[J]. *Nature*, 2007, 449(7165): 1029-1032.
- [11] Miao J W, Ishikawa T, Robinson I K, et al. Beyond crystallography: diffractive imaging using coherent X-ray light sources[J]. *Science*, 2015, 348(6234): 530-535.
- [12] Tschernajew M, Hädrich S, Klas R, et al. High repetition rate high harmonic generation with ultra-high photon flux[C]//*Laser Congress 2020 (ASSL, LAC)*, October 13-16, 2020, Washington, DC: Optica Publishing Group, 2020: JTh2A.21.
- [13] Tadesse G K, Klas R, Demmler S, et al. High speed and high resolution table-top nanoscale imaging[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(22): 5170-5173.
- [14] Tadesse G K, Eschen W, Klas R, et al. Wavelength-scale ptychographic coherent diffractive imaging using a high-order harmonic source[J]. *Scientific Reports*, 2019, 9: 1735.
- [15] Tadesse G K, Eschen W, Klas R, et al. High resolution XUV Fourier transform holography on a table top[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8: 8677.

- [16] Kinoshita H, Harada T, Nagata Y, et al. Development of EUV mask inspection system using high-order harmonic generation with a femtosecond laser[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2014, 53(8): 086701.
- [17] Klas R, Eschen W, Kirsche A, et al. Generation of coherent broadband high photon flux continua in the XUV with a sub-two-cycle fiber laser[J]. *Optics Express*, 2020, 28(5): 6188-6196.
- [18] White J, O' Sullivan G, Zakharov S, et al. Tin laser-produced plasma source modeling at 13.5 nm for extreme ultraviolet lithography[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(15): 151501.
- [19] Benschop J, Banine V, Lok S, et al. Extreme ultraviolet lithography: status and prospects[J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, 2008, 26(6): 2204-2207.
- [20] Loetgering L, Witte S, Rothhardt J. Advances in laboratory-scale ptychography using high harmonic sources[J]. *Optics Express*, 2022, 30(3): 4133-4164.
- [21] 高记星, 娄智远, 杨帆, 等. 基于百太瓦级激光系统驱动的高能量 13 nm 波段高次谐波产生[J]. *光学学报*, 2024, 44(2): 0214001.
- Gao J X, Lou Z Y, Yang F, et al. High-energy high-order harmonic generation around 13 nm wavelength based on hundred-terawatt-level laser system[J]. *Acta Optica Sinica*, 2024, 44(2): 0214001.
- [22] 张波, 齐争, 张文艳, 等. 基于回声增强高次谐波产生的双色自由电子激光[J]. *光学学报*, 2023, 43(4): 0434003.
- Zhang B, Zheng Q, Zhang W Y, et al. Two-color free electron laser based on echo-enabled harmonic generation[J]. *Acta Optica Sinica*, 2023, 43(4): 0434003.
- [23] 戴晨, 汪洋, 缪志明, 等. 基于飞秒激光与物质相互作用的高次谐波产生及应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(3): 0300001.
- Dai C, Wang Y, Miao Z M, et al. Generation and application of high-order harmonics based on interaction between femtosecond laser and matter[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(3): 0300001.
- [24] Li J, Li K, Zhang X S, et al. Highly efficient and aberration-free off-plane grating spectrometer and monochromator for EUV: soft X-ray applications[J]. *Light: Science & Applications*, 2024, 13: 12.
- [25] Li K, Popmintchev D, Li R X, et al. Globally optimized monochromator for coherent diffractive imaging with tunable EUV wavelength[C]//*Optica High-brightness Sources and Light-driven Interactions Congress 2022, March 21-25, 2022, Budapest, Washington, DC: Optica Publishing Group, 2022: HTh3B.3.*
- [26] Schürer M, Spielmann C, Wobruschek P, et al. Coherent 0.5-keV X-ray emission from helium driven by a sub-10-fs laser[J]. *Physical Review Letters*, 1998, 80(15): 3236-3239.

High Power and High Stability 13.5 nm Extreme Ultraviolet Light Source Driven by High-Order Harmonics

Li Kui^{1,4}, Meng Runyu^{2,3}, Li Ruixuan^{1,4}, Zhang Guangyin^{1,4}, Yao Mingjie⁵, Xu Hao¹, Wang Yutong¹, Li Jie^{1,4***}, Zhang Xiaoshi^{1,2**}, Fan Zhongwei^{4*}

¹*Aerospace Information Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100094, China;*

²*School of Physics and Astronomy, Yunnan University, Kunming 650216, Yunnan, China;*

³*Yunnan Observatories, Chinese Academy of Sciences, Kunming 650216, Yunnan, China;*

⁴*School of Optoelectronics, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;*

⁵*School of Instrumentation and Optoelectronic Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China*

Abstract

Objective Short wavelength, short-pulse, and high-coherence laser sources are urgently needed for research on ultra-wide dynamics at the microscopic scale. Additionally, with the demand for an ever-increasing chip computing speed, the semiconductor field urgently requires small and low-cost extreme ultraviolet light sources for material development and wafer defect detection. High-order harmonic (HHG) technology is used to realize laboratory desktop applications and produce high-coherence and high-resolution extreme ultraviolet (EUV) light sources, which is one of the most reliable technologies and is gradually becoming one of the most important tools for atomic, molecular, advanced quantum, and other materials research as well as nano-imaging. Based on the semiconductor field and experimental requirements, we build a set of HHG-EUV sources using a commercial Ti:sapphire laser, which is a highly stable, high-power 13.5-nm source. This will advance research in material development, semiconductor performance characterization, biomedical imaging, wafer defect detection, and other fields of research.

Methods High-order harmonic processes can be explained by the semiclassical three-step model, and several experiments have demonstrated that Ti:sapphire lasers are among the best driving sources for generating an EUV source. Focused high-average-power laser pulses interacting with rare gases produce harmonics that cover the extreme ultraviolet (UV) and soft X-ray regions, thereby making them the most efficient source for electrodynamic studies. The reaction region is commonly characterized using nozzles, gas cells, and hollow waveguides. The latter has the highest harmonic conversion efficiency owing to the phase modulation process; however, it is difficult to calibrate and achieve a stable output over long periods. To achieve a high flux and stable output from a 13.5-nm harmonic source, we design and build a beam stabilization control system to assist the alignment process and maintain beam stability. In addition, we build a dual-optical and flat-field spectrometer that can effectively optimize the harmonic aberration in the harmonics generated by the device.

Results and Discussions When helium is used as the generation gas, the spectral distribution around 13.46 nm is filtered with Zr films. A calibrated photodiode is used to measure the optical power signal, and the total power generated by the light source is

calculated as approximately $1.9 \mu\text{W}$. The spot shape is captured using complementary metal-oxide semiconductor (CMOS) at a distance of 1.9 m from the light source [Fig. 2(b)], and the $1/e^2$ spot size is calculated to be $1.92 \text{ mm} \times 1.67 \text{ mm}$ with the x -divergence full-angle of the spot calculated to be 1.01 mrad, and the y -divergence full-angle of the spot calculated to be 0.88 mrad. When argon is used as the generation gas, two 250-nm thick Al films are used for spectral filtering, and the spectral distribution is around 30 nm. The calculated average power is $120 \mu\text{W}$ at the light source. Furthermore, in order to measure the pointing and power stability of the EUV beams, a CMOS is placed at a distance of 1.9 m from the light source. The root-mean-square (RMS) of the pointing stability is then calculated using the offset of the spot center from the initial position over a 12-h period, with the pointing offset of the beam in the x -direction controlled to within $6.3 \mu\text{rad}$ and that in the y -direction controlled to within $7.2 \mu\text{rad}$. The average RMS power stability over a 12-h period is 4.37%.

Wavelength calibration is performed using an in-house-designed dual-optics flat-field spectrometer with Al and Si films, as shown in Fig. 4(b), which demonstrates the filtered HHG spectral signals of the different films collected using a grating with groove density of 500 line/mm. With the help of the steep absorption edge of the Si film at approximately 12.5 nm (the absorption peak of the Al film is at approximately 17.05 nm), the position of the 59th harmonic peak at 13.46 nm is obtained. Combined with the slit, our flat-field spectrometer can output any chosen harmonic that minimizes the aberration. As shown in Fig. 6, we analyze the first-, second-, and third-order diffraction harmonic intensities of the grating acquired by CMOS, which are consistent with the results of the theoretical coupling calculations. We significantly improve the harmonic spectral resolution using a gold-plated planar grating with groove density of 1200 line/mm. We determine that the 13.46-nm harmonic contains an average power of about $0.32 \mu\text{W}$, and that its true bandwidth is less than 0.124 nm.

Conclusions A high-power, high-stability HHG source with a spectrum ranging from 10 nm to 40 nm is developed based on an inflatable hollow optical waveguide using a titanium gemstone laser as the driving light source. Using helium or argon as the reaction gas, multiple harmonics covering 10 nm to 40 nm are obtained, and the total power can be as high as $120 \mu\text{W}$. Combined with an in-house designed dual-optics flat-field spectrometer and a monochromator, a single harmonic with an average power of about $0.32 \mu\text{W}$, a bandwidth of about 0.124 nm and a center wavelength of 13.46 nm is obtained. The engineering design is adopted for the system and a technical breakthrough for this type of light source in terms of the pointing stability and power stability index is therefore successfully realized, which are world-leading results. Our study lays a solid foundation for the application and promotion of this light source in the industry. This light source will be popularized and validated in the fields of EUV interference lithography experiments, photoresist research and development, material parameter measurements in EUV lithography technology, nanometer or quantum material research and development, and semiconductor wafer defect detection.

Key words lasers; high-order harmonics; extreme ultraviolet laser; 13.5 nm light source; soft X-rays; femtosecond laser