エキシマレーザ放電の密度揺らぎ測定

正員 高木 茂行 (東 芝)

非会員 柿崎 弘司 (東 芝)

正員 後藤 達美 (東 芝)

正員 山部 長兵衛 (名古屋大)

正員 堀井 憲爾 (名古屋大)

Measurement of the Gas Density Fluctuation in the Excimer Laser Discharge

Shigeyuki Takagi, Member, Koji Kakizaki, Non-member, Tatsumi Goto, Member (Toshiba Corp.), Chobei Yamabe, Member, Kenji Horii, Member (Nagoya University)

To investigate the gas density fluctuations caused by the XeCl laser discharge, the deflection of the beam was monitored by passing He-Ne laser beam through the discharge region. Three kinds of the gas density fluctuations were observed as follows: (1) propagating to the transverse directions of the discharge, (2) making round trips between the main electrodes, (3) being generated by the preionization pin electrode sparks.

We also measured the propagation velocities of the gas density fluctuations, shifting the beam parallel to the excimer laser optical axis and compared them with the sonic velocity at 20 degree centigrade. The fluctuation (1) propagates 1.6 times faster than the sonic velocity at the start, and soon slows down to the sonic velocity. The fluctuation (2) propagates slightly faster than the sonic velocity because the discharge region is in high temperature. The fluctuation (3) travels at the same as the sonic velocity.

キーワード：エキシマレーザ，密度揺らぎ，主放電，予備電離，屈折

1. ま え が き

エキシマレーザは，紫外域で発振する高出力パルスレーザとして，半導体分野・化学分野への応用が期待されている。エキシマレーザでは，そのパルス幅が通常数十 ns と短いため，実用化のために高繰返し化が必要とされている^{(1)~(4)}。繰返し数が1~2 kHz 程度以下の場合，ガスの循環速度を上昇させることで，繰返し数を高めることができる。しかしながら，これ以上の繰返しでは，放電時に発生する密度揺らぎが，レーザ発振を不安定にすることが報告されている^{(5)~(7)}。

密度揺らぎとレーザの不安定性との関係を調べるために，これまでは主に干渉による方法⁽⁶⁾， piezo素子による方法⁽⁷⁾が試みられてきた。干渉による測定で

は，密度揺らぎの絶対量を測定するという点では優れているものの，光学系を設定するのが容易でなく，振動に弱いという欠点があった。一方，piezo素子による測定では，電気信号の測定を行うときに，電気雑音のシールドが難しく，高電圧部に対する絶縁性も考慮する必要があるため，素子の設定位置などに制約があった。

そこで，放電時に発生する密度揺らぎを簡便に測定するために，He-Ne レーザ光を放電部およびその近傍に通し，揺らぎによる屈折量をホトダイオードで測定した。この方法は，ターナーによって TEACl₂ レーザ放電中で用いられており，電極間を往復する密度揺らぎが観察されている⁽⁸⁾。著者らは，この方法を XeCl エキシマレーザに適用し，各々主電極間を往復する密度揺らぎ，主放電の両側に伝搬する密度揺ら

図 1 放電部および放電回路
Fig. 1. Discharge region and electric circuit.

ぎ、予備電離スパークによる密度揺らぎについて、伝搬状態、速度変化を測定したので報告する。

2. 実験方法

図 1 に放電部断面および放電回路の概略図を示す。回路は、UV 自動予備電離・容量移行形である。主コンデンサ C_s 、ピーキングコンデンサ C_p は、それぞれ 13.3 nF, 11.9 nF, C_s 充電用のコイル L は 126 μ H である。陰極、陽極は幅 40 mm のチャン型形状で、放電体積は幅 10 mm, ギャップの長さ 20 mm, 長さ 280 mm である。予備電離のためのピン電極は、主電極中央より 40 mm 離れた両側にギャップ間げき 1.5 mm で、20 mm 間隔で配置されている。レーザガスは、Xe/HCl=26/3 Torr を He あるいは Ne ガスで希釈し、全ガス圧を 2.75 気圧とした。ただし、Ne 希釈の場合には、約 60 Torr の He が混入されている。また、今回の実験では、ガスの循環はしていない。主コンデンサ C_s への印加電圧は、He 希釈で 24 kV, Ne 希釈で 20 kV とした。エキシマレーザ光共振器として、出力側には合成石英、全反射側には曲率半径 10 m, 反射率 100% の誘電体多層膜ミラーを用いた。この放電部において、He 希釈で最大出力 45 mJ, 最大効率 0.9%, Ne 希釈で 80 mJ, 1.8% が得られた。

図 2(a) は、陰極・陽極間の典型的な電圧波形、(b) 図はこれに対応するレーザ出力波形で、Ne 希釈ガス、印加電圧 24 kV の場合の測定結果である。サイラトロンが動作して、 C_s の正電位側が接地されるとその対極側電位が負の高電位になり、ピーキングコンデンサ C_p が約 150 ns 間で、負の電圧に充電される。この過程で、ピン電極ギャップではスパーク放電が点弧し、その紫外光により、主放電部を予備電離す

図 2 電圧波形(a)とレーザ出力波形(b)
Fig. 2. Breakdown voltage (a) and laser power waveform (b).

図 3 光学測定系図(a)と X, Y 軸方向(b)
Fig. 3. Optical measurement setup (a) and X, Y axis (b).

る。 C_p への充電と電極間の予備電離が十分進んだ時点で主放電が点弧し、 C_p と主電極を結ぶループ回路の残留インダクタンス約 11 nH のために、80 ns 間に電圧極性が変化し放電電流が流れる。レーザは電圧変化開始より約 50 ns 遅れて発振し、そのパルス半値幅は 20 ns である。

図 3 に密度揺らぎの測定光学系を示す。(a) 図は光学系の概略図、(b) 図は He-Ne レーザの移動方向を示す。He-Ne レーザの出力は 1 mW, ビーム径 0.7 mm である。He-Ne レーザ検出用のホトダイオード

は、受光面 $4.1\text{ mm}\phi$ 、波長範囲 $320\sim 1,060\text{ nm}$ の浜松フォトニクス社製 S1722-02 を使用した。また、ホットダイオードの全面には、レーザビーム径と同じ系のアパーチャを置いた。He-Ne レーザを通すための光学窓としては、エキシマレーザ用の光共振器をそのまま使用し出力窓側から入射させた。

密度揺らぎの空間分布を測定するため、He-Ne レーザを主放電近傍で光軸と平行に移動させた。ホットダイオード側から見た電極近傍の様子を図 3(b) に示す。以下、一方の電極から他方の電極へ移動する方向を Y 軸方向 (上下方向)、それに垂直な方向を X 軸方向 (水平方向) と呼ぶことにする。主放電部中央を $(0, 0)$ とし、それぞれの正・負方向を図 3(b) のように定義した。

3. 実験結果

〈3・1〉 放電による密度揺らぎ 図 4(a) にホットダイオード出力波形を示す。測定点は放電部中央 $(0, 0)$ であり、時間 0 は放電開始時を示している。また、レーザガスには Ne 希釈ガスを用いた。放電によるガス密度揺らぎ (以下、単に密度揺らぎと呼ぶ) により、He-Ne レーザビームが光路で屈折されホットダイオードの受光面から外れ、ダイオード出力が低下する。レーザビームが屈折しても受光できるように、大形面積 $10\times 10\text{ mm}^2$ のホットダイオード (浜松フォトニクス社製 S1723-04) で、同様な実験を行った。その結果、出力変動は観察されなかったのでビームの散乱はなく、単なる屈折現象であると判定した。(a) 図では、放電と同時に大きな密度揺らぎが発生し、時間経過と共に初めの状態に回復していく。これは、およそ 40 ms 間持続しており、放電時に加熱されたエキシマレーザガスが、徐々に冷却されていく状態を示すと考えられる。

(a) 図について、放電直後の状態を時間スケールを拡大して示したのが (b) 図である。ホットダイオード出力が最初正電位に振れるのは、放電による発光が測定されているためである。放電後約 $5\text{ }\mu\text{s}$ で、ダイオードの出力は大きく低下しており、最初の密度揺らぎ A が観察される。その後、 $7\sim 70\text{ }\mu\text{s}$ にわたり密度揺らぎ B が観察され、更に $80\text{ }\mu\text{s}$ 以降に、3 番目の密度揺らぎ C が観察されている。

これらの密度揺らぎについて、He-Ne レーザビームを X - Y 方向に移動し、その発生源および速度等を調べた。図 5 は、図 4(b) における A~C の密度揺らぎ発生状況を概念図として示すもので、A は主放電部で発生し水平方向両側に向かって伝搬する密度揺らぎ、B は陽極・陰極面で発生し上下方向に電極間を往復する密度揺らぎ、C は予備電離用ピン電極スパークで発生し水平方向両側に向かって伝搬する密度揺らぎである。以下、各々の密度揺らぎについて、〈3・2〉~〈3・4〉節で He 希釈ガスでの実験結果を報告する。

図 4 放電による密度揺らぎ
Fig. 4. Gas density fluctuation in the discharge.

図 5 密度揺らぎ発生状態図
Fig. 5. Propagation of the gas density fluctuation.

らぎ、B は陽極・陰極面で発生し上下方向に電極間を往復する密度揺らぎ、C は予備電離用ピン電極スパークで発生し水平方向両側に向かって伝搬する密度揺らぎである。以下、各々の密度揺らぎについて、〈3・2〉~〈3・4〉節で He 希釈ガスでの実験結果を報告する。

〈3・2〉 主放電の両側に伝搬する密度揺らぎ (A)

A の密度揺らぎについて調べるために、He-Ne レーザビームを $Y=0$ で X 軸負の方向に移動し、各点でのホットダイオード出力を観測した。図 6(a) は、こ

図 6 X 軸方向に伝搬する密度揺らぎ波形 (a) と伝搬速度 (b)

Fig. 6. Waveform of the gas density fluctuation propagating along X-axis (a) and the velocity (b).

のときの波形を示したものである。放電部からの距離が遠くなるにつれて、密度揺らぎの到達時間が遅くなっているのがわかる。波形は示されていないが、正方向にビームを移動した場合も同様な結果が得られた。

図 6(a) の X 方向測定位置を縦軸に、最初の密度揺らぎの到達時間を横軸に示したのが (b) 図である。図中の破線は周囲温度 20°C における音速の伝搬状態を示している。密度揺らぎ A の伝搬平均速度は、最

初の測定点までは 1,300 m/s 以上と速いが、経過時間と共に遅くなっている。今回の実験では、測定範囲が $X = \pm 13.5$ mm と狭いため観察されなかったが、十分に伝搬した後は、音速 853 m/s に近づくと考えられる⁽⁹⁾。また、伝搬速度が最初 1,300 m/s 以上と速く、次第に遅くなっていくことから、この密度揺らぎは衝撃波によるものであると推察される。

〈3・3〉電極間を伝搬する密度揺らぎ (B) He-Ne レーザビームを $X=0$, $Y=\pm 8.5$ mm の範囲で動かし、電極間を伝搬する密度揺らぎ B について調べた。図 7(a) は、各点でのホットダイオード出力波形を示すものである。この測定では、電極間の密度揺らぎ B を観察しやすくするために、ビームの屈折方向性を利用し、ホットダイオードの前面にピンホールを置き、主放電の両側に伝搬する密度揺らぎ A による信号成分を小さくした。He 希釈ガスでは、図 4 の Ne 希釈の場合と異なり、放電直後に、主放電から両側に伝搬する密度揺らぎ A と電極間を往復する密度揺らぎ B が区別できなくなっている。図中の矢印は密度揺らぎの伝搬状況を示すもので、各電極面で発生した密度揺らぎが反対側の電極に向かって伝搬していくのがわかる。

この密度揺らぎの Y 方向測定位置を縦軸に、到達時間を横軸に示したのが図 7(b) である。密度揺らぎは陰極・陽極にかかわらずほぼ同じで、一定速度 925 m/s で伝搬している。また、放電とほぼ同時に両電極面より密度揺らぎが発生していることから、密度揺らぎ B は、A より局所的で量的に少ないエネルギーの陰極降下・陽極降下部放電から発生したと考えられる。

〈3・4〉予備電離による密度揺らぎ (C) 予備電離スパークによる密度揺らぎを測定するため、主コンデンサ C_s への印加電圧を 17 kV に下げ、主放電が点弧しないようにして、ピン電極による放電のみを点弧した。図 8(a) は He-Ne レーザビームを $Y=0$ で、X 軸方向に移動して密度揺らぎの伝搬状態を調べた結果を示す。最初の密度揺らぎは電極中央から遠い位置ほど早く観察されており、ピン電極から放電部中央に向かって密度揺らぎが伝搬しているのがわかる。また、電極中央では両側からの密度揺らぎが重なるために、他のどの測定点より大きな出力波形が得られている。衝突後の密度揺らぎは、最初に伝搬してきた密度揺らぎの出力波形と同時に測定されるため到達時間を明らかにするのが難しいが、二つ目の大きな出力波形に注目すれば、矢印に示したように伝搬していると考えられる。

図 7 電極間を往復する密度揺らぎ波形(a)と伝搬速度(b)

Fig.7. Waveform of the gas density fluctuation propagating between the main electrodes(a) and the velocity(b).

図 8 予備電離による密度揺らぎ波形(a)と伝搬速度(b)

Fig.8. Gas density fluctuation from the pin electrode sparks(a) and the propagating velocity(b).

図 8(a)の測定位置を縦軸に、到達時間を横軸に示したのが(b)図である。同図には、(a)図で衝突後の密度揺らぎも測定点としてプロットしてある。測定点

は時間に対してほぼ直線的に並んでおり、約855 m/sの一定速度で伝搬していることがわかる。ピン電極スパークで消費されるエネルギーは、そのギャップ間

表 1 密度揺らぎの伝搬速度
Table 1. Propagating velocities of the gas density fluctuations.

ガス混合条件 (Torr)	揺らぎの 分類	伝搬速度 (m/s)	音速 (20°C) (m/s)	音速比
Xe/HCl/He = 26/3/2,060	A	890~1,320	850	1.1~1.6
	B	925		1.1
	C	851		1.0
Xe/HCl/He/Ne = 26/3/60/2,000	A	495~711	437	1.1~1.6
	B	476		1.1
	C	449		1.0

きが小さいため、主放電で消費されるエネルギーより小さく、音速以上の衝撃波によると思われる成分は観察されなかった。得られた結果を外挿すると、時間0ではピン電極の置かれている $X = \pm 40 \text{ mm}$ の位置になり、これらの密度揺らぎがピン電極から伝搬してきたことがわかる。なお、電圧を高めて主電極も同時に点弧させた場合、各測定点でのホットダイオード出力変動は大きくなったものの、伝搬速度は変わらなかった。

〈3・5〉 Ne 希釈ガス中での密度揺らぎ 〈3・2〉〜〈3・4〉節までの実験は、He 希釈ガスの場合であるが、同様な実験を Ne 希釈ガス中でも行った。He 希釈ガス中と同様に、主放電から両側に伝搬する密度揺らぎ (A)、主電極を往復する密度揺らぎ (B)、予備電離スパークによる密度揺らぎ (C) が測定された。各々の伝搬速度、計算により求めた 20°C での音速、その音速に対する伝搬速度の比を表 1 にまとめた。音速 V_s は、

$$V_s = \sqrt{\gamma p_0 / \rho} \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 γ : 比熱比、 p_0 : 封入ガス圧力、 ρ : 密度より求めた。ただし、 γ, p, ρ はそれぞれ 20°C における値を用いた。

また、 $p_0 = 1.013 \times 10^5 \text{ N/m}^2$ とし、He 希釈で $\gamma = 1.67$ 、 $\rho = 0.232 \text{ kg/m}^3$ 、Ne 希釈で $\gamma = 1.64$ 、 $\rho = 0.871 \text{ kg/m}^3$ として計算した。

音速に対する速度比は、He および Ne 希釈ガスと共に、両側に伝搬する密度揺らぎ A は 1.1~1.6 倍、電極間を往復する密度揺らぎ B は 1.1 倍、予備電離からの密度揺らぎ C は 1.0 倍となった。

4. 検 討

今回の実験では密度揺らぎとレーザ出力との関係についての測定は行わなかったが、次のように考えている。密度揺らぎの伝搬速度は主放電の横に伝搬する密

度揺らぎ A が最も速く、揺らぎのもつエネルギー、揺らぎの絶対量も最も大きい。従って、揺らぎ A がレーザチャンバの壁などで反射され、再度放電部に戻ってきたときに次の放電が点弧すると、揺らぎによって発生するガス密度の粗密により主放電が不安定になる⁽⁵⁾。これは、密度揺らぎが戻ってくる時間と次の放電が点弧する時間とが一致すると起きるため、レーザ出力が繰返し数に依存して変化することになる。Baranov らの実験で、繰返し数とレーザ出力との関係が指摘されており⁽⁶⁾、密度揺らぎ A が出力低下の原因となることが推察される。

次に、密度揺らぎ A, B の伝搬速度が音速より速いことについて検討する。主放電部から両側に伝搬する密度揺らぎ A は、伝搬速度が最初速く、時間と共に遅くなっていくことから、衝撃波によるものであると考えられる。衝撃波の発生源から R 離れた点においては、次の関係が成り立つ⁽¹⁰⁾。

$$(C/U)^2 (R_0/R)^{a+1} = J_0 \dots \dots \dots (2)$$

ここで、C: 乱れのない流れでの音速、U: 衝撃波面の伝搬速度、a: 係数で $a=0$: 平面波、 $a=1$: 円筒面波、 $a=2$: 球面波

J_0 は、a と γ が決まると一義的に計算される数値である。今回の測定では、主放電が $20 \times 10 \times 280 \text{ mm}^3$ の直方体であることから $a=0$ と考えられ、 γ は He 希釈で 1.67 となり、 $J_0 = 1.14$ となる。また R_0 は

$$R_0 = (E_0/p_0)^{1/(a+1)} \dots \dots \dots (3)$$

ここで、 E_0 : 衝撃波面での単位面積あたりの注入エネルギー、 p_0 : 乱れのない領域での圧力

である。

〈3・2〉節での密度揺らぎ A を衝撃波であると考え、(2)、(3)式を適用し、放電部に注入されたエネルギーを計算した。 $R = 6.0 \text{ mm}$ 、 $U = 943 \text{ m/s}$ より E_a を求めると、 $E_a = 8.46 \times 10^{-2} \text{ J/cm}^2$ となる。この値に放電部の横方向面積 $2 \times 28 \text{ cm}^2$ を掛け、放電部に注入された全エネルギーを求めると、4.74 J となる。 $R = 6.0 \text{ mm}$ としたのは以下のような理由である。放電近傍で密度揺らぎは平面波であるが、伝搬と共に徐々に広がり、円筒面波に近付いていく。このため、 $a=0$ として計算するには、放電部にできるだけ近いほうがよい。一方、 $X = \pm 5 \text{ mm}$ の範囲では放電が点弧しており、密度揺らぎの発生領域である。そこで、放電領域外で主放電にできるだけ近い $X = R = 6.0 \text{ mm}$ での値を用いた。

一方、実際に放電部に注入されたエネルギーは C_s

に充電されたエネルギーより求まり、24 kV の充電電圧で 3.83 J となる。(2), (3) 式より求めた値 4.47 J と比較すると、衝撃波から求めた値が 24% 程度大きくなったが、オーダとしては一致している。

次に、電極間を往復する密度揺らぎ B では、伝搬速度が音速より速いもののほぼ一定速度であり、衝撃波の伝搬状態とは異なっている。放電によりエキシマレーザガス媒質が加熱され、温度が上昇し、密度揺らぎが 1 回半程度往復する時間領域では、伝搬速度が速くなっていると考えられる。室温での音速と伝搬速度を比べることで、レーザガス媒質の温度が推定でき、He 希釈ガス、Ne 希釈ガスともに約 75 度となった。

5. む す び

エキシマレーザガス中で放電時に発生する密度揺らぎを、He-Ne レーザの屈折を利用して測定し、主放電部から両側に伝搬する密度揺らぎ、電極間を往復する密度揺らぎ、予備電離からの密度揺らぎの 3 種類が観察された。各々の密度揺らぎについて次のような結果が得られた。

(1) 主放電部から両側へ伝搬する密度揺らぎ (A) は衝撃波で、伝搬速度は時間と共に音速に近づく。発生源の形状を平面として計算した放電部への注入エネルギーは、実際の値より 24% 程度大きくなった。

(2) 電極間を往復する密度揺らぎ (B) は、陰極・陽極降下エネルギーで発生する。伝搬速度から、放電により加熱されたエキシマレーザガス媒質の温度が約 75 度であると推定された。

(3) 主放電に比べて消費量の少ない予備電離により発生した密度揺らぎ (C) は、音速で主放電部まで伝搬してくる。

今後、今回の測定方法を用いて、高繰返し状態におけるレーザ出力と密度揺らぎとの関係を明確にしている。

本研究は、新エネルギー・産業技術総合開発機構の大型工業技術開発「超先端加工システムの研究開発」の一環としてなされたものである。

(平成 2 年 6 月 26 日受付, 同 2 年 10 月 2 日再受付)

文 献

- (1) C. P. Wang & O. L. Gibb: "2-kHz Repetition Rate XeF Laser", *IEEE, J. Quantum Electron.*, **QE-15**, 318(1979)
- (2) T. S. Fahlen: "200 W KrF Gas Transport Laser", *ibid.*, **QE-16**, 1260(1980)
- (3) V. Yu. Baranov, V. M. Borisov, A. Yu. Vinokhodov, F. I. Vysikailo & Yu. B. Kiryukhin: "Increase in the repetition frequency of XeCl laser pulses of 1 kHz", *Sov. J. Quantum Electron.*, **14**, 558(1984)

- (4) M. L. Sentis, P. Delaporte, B. M. Forestier, & B. L. Fontaine: "Parametric studies of X-ray preionized discharge XeCl laser at single shot and high pulse rate frequency (1 kHz)", *J. Appl. Phys.*, **66**, 1925(1989)
- (5) J. A. Fox: "A double-electrode-pair-pulsed laser", *Appl. Phys. Lett.*, **37**, 5990(1980)
- (6) V. Yu. Baranov, S. A. Kazakov, D. D. Malyuta, V. S. Mezhevov, A. P. Napartovich, V. G. Nisiev, M. Yu. Orlov, A. I. Starodubtsev & A. N. Starostin: "Average power limitations in high-repetition-rate pulsed gas lasers at 10.6 and 16 μm ", *Appl. Opt.*, **19**, 930(1980)
- (7) V. M. Borisov, A. Yu. Vinkhodov & Yu. B. Kiryukhin: "Output energy evolution effects in a pulse-periodic XeCl excimer laser with an average power of $\sim 400\text{W}$ ", *Sov. J. Quantum Electron.*, **17**, 595(1987)
- (8) R. Turner: "The glow-to-arc transition in a pulsed high-pressure gas discharge", *J. Appl. Phys.*, **52**, 681(1981)
- (9) 野口: 「光照射による放電ギャップの制御」, 電総研研報, No. 756, 49(昭 50)
- (10) A. Sakurai: "On the Propagation and Structure of the Blast Wave", *J. Phys. soc. Japan.*, **8**, 662(1953)

高 木 茂 行 (正員)

昭和 59 年 3 月名古屋大学大学院工学研究科修士課程修了。同年 4 月(株)東芝入社。エキシマレーザの研究開発に従事。現在、同社生産技術研究所レーザ研究部所属。応用物理学会、レーザ学会会員。

柿 崎 弘 司 (非会員)

昭和 63 年 3 月北海道大学大学院工学研究科修士課程修了。同年 4 月(株)東芝入社。エキシマレーザの研究開発に従事。現在、同社生産技術研究所レーザ研究部所属。応用物理学会会員。

後 藤 達 美 (正員)

昭和 41 年 3 月名古屋大学大学院工学研究科修士課程修了。同年 4 月(株)東芝入社。ガスレーザの研究開発に従事。現在、同社生産技術研究所レーザ研究部所属。応用物理学会、レーザ学会会員。

山 部 長兵衛 (正員)

昭和19年12月14日生。49年10月大阪大学大学院博士課程中退、直ちに大学工学部助手。名古屋大学助手、同講師を経て、58年同助教授、現在に至る。工学博士。レーザ放電化学、宇宙エネルギーに関する研究に従事。応用物理学会、レーザ学会、国際オゾン協合 (IOA) 会員。

堀 井 憲 爾 (正員)

昭和5年1月7日生。27年3月名古屋大学工学部電気工学科卒業。同年4月工業技術院電気試験所電力部入所。高電圧絶縁に関する研究に従事。46年4月名古屋大学工学部電気工学科教授。高電圧工学、放電現象、ロケット誘雷、超電導電力応用などの研究に従事。工学博士。44年、54年電気学会論文賞、61年同電力賞受賞。放電研究グループ副会長。CIGRE 会員。