高繰り返しエキシマレーザにおける レーザ出力のガス流速依存性

正員 柿崎 弘 司 (東芝)

正員 高木 茂 行 (東芝)

正員 佐藤 三 郎 (東芝)

正員 後藤 達 美 (東芝)

Dependence of Excimer Laser Energy on Gas Flow Velocity in High Repetition Rate Operations

Koji Kakizaki, Member, Noboru Okamoto, Non-Member, Shigeyuki Takagi, Member,
Saburo Sato, Member, Tatumi Goto, Member (Toshiba Corp.)

To investigate the dependence of laser energy on a gas flow velocity in high repetition rate operations, the excimer laser energy was measured by varying the gas flow velocity up to a repetition rate of 3 kHz. The laser energy decreased at a clearance ratio of around 2 and 4 in our apparatus. When the upstream pin electrodes for preionization were removed, these decreases were not observed. This suggests that the preionization discharge products flow into the main discharge region at an onset of the following discharge and decrease the laser energy.

In order to show the influence of the preionization discharge products, we have defined the avoidance ratio $AR (=d \cdot f/v)$, d : distance between pin electrodes and a center of main electrode, f : repetition rate, v : gas flow velocity). If AR becomes an integral number, the filamentation is occurred in following main discharges, resulting in laser energy reductions.

キーワード: エキシマレーザ、レーザ出力、ガス流速、繰り返し数、予備電離

1. まえがき

エキシマレーザは、短波長の紫外域で高効率、大出力発振が得られるので、その実用化が大いに期待されている。現在、実用されているレーザのうちYAGレーザやCO₂レーザは、光の熱作用を利用するものであるが、エキシマレーザは光子エネルギーが高いため、光化学作用としての利用が可能であり、新たな応用分野への展開が注目されている。しかしながら、エキシマレーザは現在の技術では連続発振ができず、そのパルス繰り返し数も数百Hz程度と低い。そこで、実用化に際し、生産性、制御性を高めるために高繰り返し動作が必要になる。

1979年にWangら(米)がレーザガスを高压タンクから放電部に噴射して、動作時間は0.1秒程度と短い、繰り返し数2kHz、レーザ出力12mJ/パルスのXeFレーザを実現させた⁽¹⁾。XeClレーザに関しては、1984年にBaranovら(露)が1kHzまでの発振を行っ

た⁽²⁾のに始まり、kHzを越える高繰り返し発振に成功した報告がこれまでに数件ある^{(3)・(4)}。それとともに、kHz台の繰り返し領域では、レーザ発振の不安定化やレーザ出力の低下の問題が報告されている。これらの原因は、電極材料、予備電離強度、音響波・衝撃波などと放電安定性との関係から論じられてきた^{(4)・(5)}が、現在においても飛躍的な性能向上が図られるまでには至っていない。

エキシマレーザの励起放電を安定に点弧するためには、放電空間をあらかじめ均一に弱電離状態にしておく必要がある。この予備電離手段として、一般に主電極の両側にピン電極を配置し、スパーク放電によって発生する紫外線光を用いる。

レーザ発振の繰り返し動作は、レーザガスを循環させ、放電部のガスを次の放電までに置換することで可能となる。このため、安定なレーザ発振を得るには繰り返し数に応じて、置換に必要な速度以上のガス循環が必要となる⁽⁶⁾。本論文では、高繰り返し動作においてレーザ出力がガス流速

によって変化することから、ガス上流側の予備電離放電が主放電に与える影響を検討した。また、その原因となる予備電離用ピン電極の設置場所を変化させることにより、本論文で提案したモデルの実証を行ったので報告する。

2. 実験装置

実験に用いたXeClエキシマレーザ装置⁽⁷⁾の断面図を図1に示す。発振波長は308nmである。本装置の大きさは、幅2m、高さ1.5m、奥行き1mであり、三段翼の軸流ブロアを磁気カップリングを介して外部モータにより駆動することにより、放電部での最大ガス流速は、120m/sが得られる。ガス流は図中の矢印方向に流れ、放電部に対して左側が上流、右側が下流となる。

図2に、放電部断面および励起回路の概略図を示す。励起回路は容量移行型であり、主コンデンサ $C_s=15\text{ nF}$ 、ピーキングコンデンサ $C_p=13\text{ nF}$ である。主電極は、幅40mmのチャン型形状で、放電体積は、幅10mm、ギャップ長20mm、長さ280mmである。UV自動予備電離を行うピン電極は、銅にニッケルメッキを施したものであり、主電極に沿って両側に20mm間隔で配置されており、ギャップ長は2~3mmである。主電極中心軸とピン電極の距離は40mmに設定してある。

実験に用いたレーザガスは、 $\text{HCl}/\text{Xe}=0.4/3.5\text{ kPa}$ をNeあるいはHeガスで希釈しており、今後それぞれNe希釈レーザガス、He希釈レーザガスと呼ぶことにする。ただし、Ne希釈の場合には、HCl希釈用のHeが8kPa混入されている。また、全ガス圧は279kPaとしている。

レーザ出力は、とくに断りの無い限り、装置を連続動作させ、モレクトロン社製のエネルギーメータJ50HRを用いて測定し、1パルス当たりのエネルギーとして与えた。また、放電写真は、横方向の観測窓からスチルカメラを用いて、レーザ装置を数秒間動作させ10ショット程度を重ね撮りした。

3. 実験結果

<3.1> ガス流速とレーザ出力の関係 高繰り返し動作においてガス流速が十分でないと、電極のガス下流側にアーク状の異常放電が発生し、レーザ出力は低下する。この異常放電は、ガス流速を増加させることで抑止でき、さらに増加させても出力は変化しないと考えていた。しかし、実際にガス流速を上げて出力測定してみたところ、図3に示すように、ガス流速に対してレーザ出力が変化することがわかった。ここではNe希釈レーザガスを使用し、主コンデンサの充電電圧 V_a は21kVの場合であり、繰り返し数をパラメータとして3kHzまでのレーザ出力を測定した。

ガス流速に対するレーザ出力は、繰り返し数が高くなるとともに全体的に低下し、また、いずれの繰り返し数においても規則的な変化が見られる。そこで、この結果を次式

図1 エキシマレーザ断面図
Fig.1. Schematic cross section of the excimer laser.

図2 放電部および放電回路
Fig.2. Discharge section and circuit.

図3 ガス流速に対するレーザ出力特性
Fig.3. Laser energy vs. gas flow velocity.

図4 レーザ出力のCR値依存性
(Ne希釈レーザガス)

Fig.4. CR-dependence of laser energy in Ne buffer laser gas.

図5 レーザ出力のCR値依存性
(He希釈レーザガス)

Fig.5. CR-dependence of laser energy in He buffer laser gas.

で定義するCR値(クリアランス・レシオ)によって整理した。

$$CR \equiv v / (w * f) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 v :ガス流速(m/s)、 w :ガス流方向の放電幅(m)、 f :繰り返し数(Hz)

CR値はショット間のガスの入れ換わり回数を表し、ここではアーク状の異常放電発生の限界値⁽⁶⁾を与えるものとはせず、ガス流速と繰り返し数の関係を示すものとした。

図4は、Ne希釈レーザガス、 $V_a = 21$ kVにおけるレーザー出力のCR値依存性を示す。縦軸に示す相対レーザー出力は、繰り返し数1 Hz時の出力35 mJ/パルスを100%としている。これより、各繰り返し数において、CR=2、および4付近で出力が低下していることがわかる。また、同じCR値に対しては、レーザー出力は繰り返し数の増加とともに低下している。

同様に、He希釈レーザガスで $V_a = 24$ kVにおいて得られた結果を図5に示す。レーザー出力は、繰り返し数2 kHzまで測定した。相対レーザー出力100%は34 mJ/パルスに対応する。Ne希釈レーザガスの場合に比較して、CR=2および4付近における出力低下分は大きい、CR値に対する出力特性はほぼ同ような変化を示している。

なお、図4、図5においてCR=2未満の測定値が示されていないのは、前述した異常放電が発生するためである。

<3・2> レーザ出力低下の原因 CR値に依存してレーザー出力が低下した原因を調べるため、CR値を変化させて放電状態の観測を行った。図6は、Ne希釈レーザガス、繰り返し数1 kHzにおいて、ガス上流側の観測窓から撮影した放電写真である。写真中、上側が陰極、下側が陽極

であり、その間の放電中の白点は予備電離放電発光、黒線はガス上流の予備電離用ピン電極である。CR=2および4の場合には、このピン電極に対応して主放電中に電流の集中が発生していることがわかる(写真中、白い線状の発光)。それに対し、CR=3および6の場合にはピン電極に対応した電流の集中がほとんど見られない。この結果から、レーザー出力の低下はガス上流側の予備電離放電に起因すると考えられる。

そこで、図7に示すように、ガス上流側の予備電離放電後のピン電極間のガス(以下、予備電離放電ガスと呼ぶ)が主放電に影響を与えると仮定して、次式のAR値(アボイダンス・レシオ)を定義する。

$$HCl/Xe/He/Ne=0.4/3.5/8/267 \text{ kPa} \\ V_a=21 \text{ kV} \quad f=1 \text{ kHz}$$

CR=2,4

CR=3,6

図6 CR値変化に対する放電状態

Fig.6. Discharge conditions for CR.

図7 レーザ出力のガス流速依存性のモデル図
Fig.7. Schematic model for dependence of laser energy on gas flow velocity.

$AR \equiv d * f / v$ (2)
ここで、 d : 主電極中心軸からガス上流側の予備電離用ピン電極までの距離 (m)

d/v は、予備電離放電ガスが主放電空間に到達するまでの時間を表し、繰り返し数 f で決まる放電周期と同期するとき、 AR 値は整数となる。この値を用いて、レーザ出力の低下原因を推察すると以下になる。 $AR=1$ のガス流速においては、予備電離放電ガスが、1ショット後の放電点弧時に主放電空間へ流れ込み、また、 $AR=2$ のガス流速においては、予備電離放電ガスが2ショット後の放電点弧時に主放電空間へ流れ込む。その結果、主放電中に電流の集中を発生させ、主放電を不安定化する。

本装置においては $d=40\text{ mm}$ であるので、 $AR=1$ 、 2 はそれぞれ $CR=4$ 、 2 に対応した。 AR 値が整数にならないときには、予備電離放電ガスは後続の放電点弧時に主放電空間へ入り込まないので、レーザ出力を低下させない。 $AR=3$ 以上でも同様な現象は起こり得るが、本装置においては、ガス流速不足により主放電が異常となり、レーザ出力は得られない。

次に、 $AR=2$ の場合、すなわち、2ショット後のレーザ出力への影響を確認するため、連続する3ショットのみ放電を点弧するトリプル・パルス動作を試みた。図8は、 He 希釈レーザガスにおけるパルス間隔 1 ms 、すなわち、繰り返し数に換算すると 1 kHz におけるレーザ出力のガス流速依存性である。充電電圧は電源固有の特性により変化するので、各パルスごとにこの値を図中に示した。

ここで、第1ショットの出力はガス流速に依存せずほぼ一定値を示している。これよりレーザ出力は、ガス流速を増加した場合に発生するガス流の乱れや温度上昇などには依存しないことがわかる。第2ショットの出力においては、ガス流速 20 m/s ($AR=2$ に相当) 付近におけるレーザ出力の低下は見られないが、ガス流速 40 m/s (AR

図8 トリプル・パルス動作におけるレーザ出力特性

Fig.8. Laser energy vs. gas flow velocity in triple pulse operation.

$=1$ に相当) 付近におけるレーザ出力は低下していることがわかる。これより、 $AR=2$ 付近における出力低下の原因は、第1ショットの放電によるのではないことが明らかとなった。さらに、第3ショットの出力をみると、 $AR=1$ 、および 2 付近で出力は低下しており、図5の連続パルス動作の場合とほぼ同じ変化を示している。これらの結果は、 $AR=2$ 付近の出力低下の原因が当該ショットから数えて2ショット前の放電にあることを意味している。

〈3・3〉 ガス上流側ピン電極除去の効果 このように、ガス上流側の予備電離放電ガスがレーザ出力低下の原因と考えられるので、上流側のピン電極を取り除いた状態のもとで、レーザ出力のガス流速依存性を調べた。このとき、ピーキングコンデンサの容量は変化させず、ピン電極数は下流側のみで半数となった。図9に、 Ne 希釈レーザガス、 $V_a=21\text{ kV}$ における結果を示す。横軸は前節で定義した AR 値で整理しており、縦軸のレーザ出力 100% は 41 mJ/パルス である。点線は、ガス上流側の予備電離ピン電極を取り除く前、つまり、図3、図4と同じ実験結果を示し、実線は取り除いた後の結果を示している。これより、上流側のピン電極を取り除いたことにより、各繰り返し数に対し、レーザ出力は AR 値に依存しなくなったことがわかる。本結果は、ガス上流側の予備電離放電を点弧しないことによるためであり、前節の推察を実証するものと考えられる。

しかしながら、繰り返し数の増加にともなうレーザ出力の低下はまだ存在している。図9における繰り返し数の増加による出力低下分は、図4における $AR=1$ 、 3 付近の値とほぼ等しいため、この場合には上流側の予備電離放電ガスが影響していなかったといえる。したがって、この出

図9 ガス上流側ピン電極除去の効果

Fig.9. Effect of upstream pin electrodes removed.

力の低下については、別の原因を考えなければならない。なお、繰り返し数2.5kHzにおける $AR < 1.3$ 、同3kHzにおける $AR < 1.5$ は、未測定のため図示されていない。

4. 検 討

これまでに述べた実験結果により、上流側の予備電離放電ガスが、後続の放電点弧時に主放電空間に流入すると、主放電中に電流の集中を発生させ、レーザ出力を低下させることが明らかとなった。また、その時のレーザ出力の低下分は、繰り返し数の増加にともない大きくなった。予備電離放電ガスが電流の集中を発生させる機構として以下が考えられる。

(1) 予備電離放電直後のガスは、温度上昇によりガス密度が希薄化しており、主放電空間に流れ込むと、そこでの主放電の換算電界(E/N)が局所的に高められ電離が促進される。

(2) 予備電離放電やその放電光によって生成される各種粒子が主放電空間に流れ込み、局所的に電離を促進させる。

(1)については、予備電離放電に投入されたエネルギーの大部分が熱になり、時間とともに拡散していくと考えられる。したがって、繰り返し数が高くなり、パルス間隔が短くなると、温度上昇に起因するガス密度揺らぎ $\Delta N/N$ は、後続の放電点弧時までには消滅せずに残留する。放電に影響を与えない $\Delta N/N$ の許容値としては、2%程度が報告されている⁽⁸⁾。

(2)については、繰り返し数の増加とともに出力低下分が大きくなっていることから、パルス間隔(1ms以下)程度の寿命を有する粒子の関与が考えられる。これらの粒子の候補としては、比較的寿命が長い準安定励起状態原子の

図10 パルス間隔時間とレーザ出力の関係

Fig.10. Relation between time interval and laser energy.

ほかに、実験によりmsに及ぶ寿命が確認されている各種イオンがあげられる⁽⁹⁾。

そこで、図9の $AR=1$ および2におけるレーザ出力を、パルス間隔(繰り返し数の逆数)の関数として書き換えた結果を図10に示す。 $AR=2$ においては、2ショット後の放電に影響を与えるのでパルス間隔を2倍とした。図10は、時間が大きくなるとレーザ出力の低下割合が小さくなること、つまり、レーザ出力を低下させるガス密度揺らぎや放電生成物が時間とともに減少していくことを表している。He希釈レーザガスの場合のほうがパルス間隔に対する出力の低下率は大きい、希釈ガスに依らず $AR=1$ および2においては、レーザ出力の変化は同様な曲線を描くことがわかる。また、出力の低下率は1ms付近を境に変化していることもわかる。

上流側の予備電離放電ガスに起因してレーザ出力が低下するため、高繰り返し動作における安定動作領域は限定される。これを実証するため、本実験においてはガス上流側ピン電極の除去を行った。しかしながら、実際の装置においては、予備電離の強度や均一性⁽¹⁰⁾が非常に重要になると考えられ、その十分な考慮が必要になる。本実験結果は、 AR 値により安定動作条件を決定することが可能となるのみならず、高繰り返しエキシマレーザ装置の放電部構造、例えば予備電離ピン電極と主電極の位置関係や予備電離方法等の設計に有益な指針を与える。

最後に、図9に示したように、ガス上流側のピン電極を除去した後も繰り返し数の増加にともない出力が低下している。この現象については、これまでに、繰り返し数の増加にともなうピン電極間の破壊電圧の低下が観測されており⁽¹¹⁾、これが一因になっていると考えられる。さらに、前述した推察の(2)からは、粘性によりガス流速が0に近い

主電極表面近傍においては、主放電により生成された各種イオンや準安定励起状態原子が次の放電まで残留して、高繰り返し動作を妨げることが示唆される。

5. む す び

エキシマレーザにおいて繰り返し数とガス流速を変化させてレーザ出力を測定したところ、いずれの繰り返し数においても、ガス流速に対するレーザ出力は規則的な変化を示した。この変化は、主電極に対してガス上流側の予備電離用ピン電極を除去すると見られなくなったことから、予備電離放電後のガスが原因となっていると考えられた。

そこで、上流側の予備電離放電ガスが、後続の主放電点弧時に主放電空間に流れ込む条件を示すアボイダンス・レシオ、AR値を定義した。AR値が整数に近づくとき、その数に等しいパルス数後の主放電中に、予備電離放電ガスに起因する電流の集中が発生し、レーザ出力が低下すると考えられる。

終わりに、本研究を遂行するにあたり、有益なご助言いただきました北海道大学工学部電気工学科酒井洋輔教授、ならびに大阪大学レーザ核融合研究センター 實野孝久講師に深く感謝いたします。

本論文は、通商産業省工業技術院の産業科学技術研究開発制度に基づき実施されている「超先端加工システムの研究開発」の一環として、新エネルギー・産業技術総合開発機構から超先端加工システム技術研究組合への委託事業によりまとめたものである。

(平成5年7月22日受付)

文 献

- (1) C.P.Wang, and O.L.Gibb : "2-kHz repetition rate XeF laser", IEEE J.Quantum Electron., 15, 318 (1979).
- (2) V.Yu.Baranov, V.M.Borisov, Y.Yu.Vinokhodov, F.I.Vysikailo, and Yu.B.Kiryukhin : "Increase in the repetition frequency of XeCl laser pulses to 1kHz", Sov.J.Quantum Electron., 14, 558(1984).
- (3) 高木茂行、柿崎弘司、岡本昇、佐藤三郎、後藤達美 : 「高繰り返しエキシマレーザの開発 (XII) - Xe 分圧低減による4 kHz, 200W動作 -」、レーザー研究21、566(1993).
- (4) M.L.Sentis, P.Delaporte, B.M.Forestier, and B.L.Fontaine : "Parametric studies of x-ray preionized discharge XeCl laser at single shot and at high pulse rate frequency (1kHz)", J. Appl.Phys., 66, 1925(1989).
- (5) R.V.Arutyunyan, V.M.Borisov, A.Yu.Vinokhodov, Yu.B.Kiryukhin, and A.N.Morozov : "Electrode effects in a pulse-periodic laser", Sov.J. Quantum Electron., 16, 1589(1986).

- (6) G.S.Dzakowic and S.A.Wutzke : "High-pulse-rate glow-discharge stabilization by gas flow", J. Appl.Phys., 44, 5061(1973).
- (7) S.Takagi, N.Okamoto, K.Kakizaki, S.Sato and T.Goto : "2.5kHz high repetition rate XeCl excimer laser", J.Appl.Phys., 68, 5927(1990).
- (8) 畑中秀和、河原暢朗、小原實、緑川克美、田代英夫 : 「高繰り返しTEACO₂レーザの放電領域のガス流の乱れ」、レーザー科学研究、No.11、55(1989).
- (9) M.R.Osborne : "Preionization electron density and ion decay measurements in an x-ray preionized rare-gas fluoride laser", J.Appl. Phys., 63, 32(1988).
- (10) S.Takagi, S.Sato and T.Goto : "Electron density measurements in UV-preionized XeCl and CO₂ laser gas mixtures", Jpn.J.Appl.Phys., 27, 2218 (1989).
- (11) 柿崎弘司、岡本昇、高木茂行、佐藤三郎、後藤達美 : 「5 kHz高繰り返しエキシマレーザの基礎実験 (XIV)」、秋期応用物理学学会学術講演会予稿集、11a-L-5、939 (1991).

柿崎 弘司 (正員) 昭和38年7月13日生まれ。昭和63年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所属。

高木 茂行 (正員) 昭和34年8月21日生まれ。昭和59年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。平成3年4月同大学大学院工学研究科博士課程修了。工学博士。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所属。

佐藤 三郎 (正員) 昭和27年5月26日生まれ。昭和56年名古屋大学大学院工学研究科博士課程修了。同年4月(株)東芝入社。工学博士。ガスレーザの研究開発に従事。現在、同社生産技術研究所所属。

後藤 達美 (正員) 昭和13年5月23日生まれ。昭和41年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所属。