4kHz動作XeClエキシマレーザの放電安定性とXe分圧の関係

正員	石井 彰	(東芝)	正員	安岡康一	(東芝)
非会員	丹羽景子	(東芝)	正員	坂野美菜	(東芝)
正員	玉川 徹	(東芝)	正員	大島 巖	(東芝)

Dependence of the Discharge Stability of a 4kHz XeCl Excimer Laser on the Xe Pressure

Akira Ishii, Member, Koichi Yasuoka, Member, Keiko Niwa, Non-member, Mina Sakano, Member, Tohru Tamagawa, Member, Iwao Oshima, Member (Toshiba Corporation)

The reason for the occurrence of discharge instability at up to 4 kHz operation of the XeCl excimer laser is found out related to the gas density fluctuation at the discharge area and to the pressure of Xe. We used Michelson interferometry system to measure the gas density and we measured the intensity of emission spectra from the discharge to estimate the discharge stability.

The discharge becomes unstable in case clearance ratio $CR (= v \cdot T / w)$, v : gas velocity, T : discharge period, w : discharge width is 4 because of the gas density fluctuation induced by the spark discharge for pre-ionization. In case CR is 3 the gas density fluctuation rate becomes less than 0.3 %, the discharge is stable at low Xe pressure but unstable at high Xe pressure operating at more than 3 kHz. We proposed a new model to indicate that charged particles occurred by the discharge survived until the next discharge initiation and cause discharge instability at high Xe pressure and high repetitive operation.

キーワード: エキシマレーザ, マイケルソン干渉計, ガス密度不均一性, 放電不安定性

1. はじめに

エキシマレーザは紫外域で高効率発振する高出力レーザで、リソグラフィをはじめとした微細加工分野及び超伝導薄膜や機能薄膜の形成への適用が期待されている。しかし、通常の動作条件下では出力パルス幅が数 10 nsec と極めて短く、高速で処理するためには高繰り返し化が必要である⁽¹⁾⁽²⁾。

現在までに報告された最大繰り返し数は 3 ~ 4 kHz 程度である。繰り返し数の上限は、高繰り返し時に発生する放電不安定によって制限されている。不安定発生要因には、放電の電気入力によって生ずるガス密度不均一性、音響波による密度乱れ、あるいは電極の温度上昇等による密度乱れがあり、放電入力密度が局所的に高くなって不安定になる⁽³⁾。放電入力密度分布を一樣にするためには、電子による放電媒体の電離量や付着量を決定づける換算電界 ($= E / N$, E : 電界強度, N : ガス密度) を一樣化することが必要である。電界強度は放電電極を形状制御することにより均一にできるため、換算電界の一樣化はガス密度分布を一樣化することに帰着する。放電によって生じたガス密度分布の不均一性は、後続の放電までの期間に充分高速なガス流で取り去ることができる。ただし送風機で消費されるエネルギーはガス流速の 3 乗に比例して増加するため、レーザ全体の効率を低下させないためには、必要なガス流速を

低減することが必要になる。このためには、放電により乱れたガス密度分布がガス流によって一樣化する過程と、ガス流速との関係を明らかにすることが重要である。これまで単発放電時の放電部のガス密度分布を、Baranov らが干渉計を用いて測定した報告例⁽⁴⁾はあるが、高繰り返し運転時の密度変化の測定例はなく、上記の関係は明らかにされていない。また、XeCl エキシマレーザでは、放電幅および放電電流密度が Xe 分圧に大きく依存し、Xe 分圧が高いほど放電が収縮して不安定になりやすいことがわかっている。そこで筆者らは、マイケルソン干渉計⁽⁵⁾と高速カメラを使用して 1 ~ 3 kHz 運転時の放電部の干渉縞を Xe 分圧をパラメータとして測定し、高繰り返し運転時のガス密度乱れ変化を定量的に求めた。また、Xe 分圧と放電安定性との関連性を見出すため、放電発光スペクトルを測定し、放電安定度をエキシマ生成量から評価した。この結果、Xe 分圧が高く繰り返し数も高い場合、放電部のガス密度乱れ量は小さいが、放電は不安定になりやすいことがわかった。

2. 実験装置及び方法

エキシマレーザ装置⁽⁶⁾⁽⁷⁾の放電励起回路は、容量移行型の自動UV予備電離方式で、充電コンデンサ容量は 32 nF, ピーキングコンデンサ容量は 30 nF である。代表的な放電体積は、放電長 610 mm, 放電幅 10 mm, ギャップ

長 20 mm より 122000 mm³ である。充電電圧は 18 kV、充電エネルギーは 5.2 J なので、放電入力密度は 24 J/(リットル・atm) になる。

放電領域の密度変化量は、マイケルソン干渉装置で測定した。図 1 (a) はマイケルソン干渉測定装置の概略で、光源は 5 mW の He-Ne レーザ、光学ウィンドーには BK 7 を使用した。

マイケルソン干渉実験で観測できる密度変化量とフリンジ変化数 Δm と屈折率変化 Δn との関係は、

$$2 \times \Delta n \times d = \Delta m \times \lambda \quad \dots (1)$$

で与えられる。ここで、 d は観測媒質内を干渉用レーザ光が通過する距離、 λ は干渉用レーザ光の波長である。

今回の測定系では $d = 1.22 \text{ m}$ 、 $\lambda = 6.328 \times 10^{-7} \text{ m}$ である。また、気体の屈折率 n と気体の密度 ρ との関係は、(2) 式の Gladstone-Dale の式で表される⁽⁴⁾。

$$n = 1 + K \rho \quad \dots (2)$$

ここで K は、Gladstone-Dale 定数である。

図 1 測定装置の概略

(a) マイケルソン干渉 (b) 放電発光スペクトル

Fig.1. Schematic diagram of measurement system

(a) Michelson interferometry
(b) Discharge emission spectra

(1) 式と (2) 式の変分すなわち $\Delta n = K \Delta \rho$ ($\Delta \rho$: 密度変化) を用いると、ガス密度変化率 ($\Delta \rho / \rho$) は、

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = \frac{\lambda}{2 d \cdot \rho \cdot K} \cdot \Delta m \quad \dots (3)$$

となり、フリンジ変化数に比例する。使用ガスの密度 ρ と Gladstone-Dale 定数 K を計算で求め、フリンジ変化数の測定から、ガス密度変化率 ($\Delta \rho / \rho$) を、(3) 式を用いて計算した。(3) 式で表せる密度乱れの測定限界は約 0.3 % である。

放電発光スペクトル測定装置の概略を図 1 (b) に示す。放電発光を効率よく光ファイバに入射させるために、焦点距離 150 mm の凸レンズで集光し、その結像面に光ファイバの入射口を配置した。光ファイバを経由した放電発光は、分光器 (ACTON VM-503) の入射スリット上に焦点を結び、グレーティングと 2 枚の球面鏡で反射された光検出部の入口に結像する。スペクトルの測定範囲は、280 ~ 600 nm である。光検出部には光電子増倍管 (MCP) を使用した。

発光スペクトル線のうち特定のものは、放電励起 XeCl エキシマレーザのキネティクスを考慮することにより、同定できる。またスペクトル強度分布の変化に対応して放電状態が推定できる。XeCl エキシマの生成機構は、

が主過程である。Xe* からのラインは、462.4 nm (7p_{1/2}-6s_{1/2}) および 467.1 nm (7p_{3/2}-6s_{1/2}) で強くなる⁽⁸⁾ ことから、465 nm 付近にて測定した。

3. 実験結果

< 3・1 > 主放電部のガス密度変化 安定な放電を持続させるため、繰り返し数の増加にともないガス流速も増加させる。2つの連続するパルスの時間間隔に、放電部のレーザガスが入れかわる割合は次式のクリアランスレシオ (CR) で定義される。

$$\text{CR} = \frac{v \times T}{w} \quad \dots (4)$$

ここで v はガス流速 (m/s)、 w は放電幅 (m)、 T は放電周期 (s) である。

放電周期とは、2つの連続するパルスの時間間隔で、繰り返し数 1 kHz のときは 1 ms、2 kHz では 0.5 ms になる。

(4) 式は、放電点弧した領域のガスが次の放電点弧までに、放電幅の CR 倍だけ移動することを表す。図 2 に、ガス成分 He/Xe = 185.3/3.47 kPa、繰り返し数 1 ~ 3 kHz のときの干渉写真を示す。図 2 において、ガス流は紙面右から左の方向に流れており、全ての繰り返し数に対して CR = 3 である。このため 1 放電周期の間に、放電幅 w の 3 倍幅ガスが移動することになる。図 2 (a) は放電直後の写真で、放電部中央付近に密度乱れが観測される。図 2 (b) は放電幅相当分レーザガスが移動した状態を示している。また (c) では、上流側の予備電離放電による密度乱れが観測できるが、繰り返し数が多いほどフリンジのずれが大きく、密度乱れ

が大きいことがわかる。(d)は放電周期だけ時間が経過した条件のため、次の放電パルスによる密度乱れが観測される。図2(c)の写真等からCR=3の場合、主放電による乱れは完全に下流に流れ、上流側の予備電離放電による密度乱れが主放電領域を通過した後に、次の放電が点弧していることがわかる。またCR=2で運転する場合は、図2(c)の状態に対応し、前々回の予備電離放電による密度乱れがある状態で、後続の放電が発生することになる。

繰返し数 経過時間	1 kHz	2 kHz	3 kHz
(a) 放電直後			
(b) 放電周期 × (1/3) 経過後			
(c) 放電周期 × (2/3) 経過後			
(d) 放電周期 経過後			

図2 高繰返し運転時の干渉写真
Fig.2. Interferograms of the discharge area in high repetitive operation

図3は、主放電によるガス密度変化率の時間経過である。ガス流速は10 m/sで、放電部中央付近の値を示す。Xe分圧が増して平均分子量が大きくなるほど、ガス密度変化率は小さくなる。図4は、図2の干渉写真の上流側の予備電離放電による密度変化量を示す。Xe分圧が高いほど密度乱れが小さく、時間の経過とともに密度乱れ量は低下することが確認できる。

< 3・2 > 放電発光スペクトル特性 Xe分圧と繰返し数が放電安定性に及ぼす影響を放電発光スペクトルから吟味した。

図5は、Xe*からの発光に対応する波長465 nm付近の発光スペクトルを示す。図5(a)はガス成分をHCl/Xe/He = 0.4/3.5/274.7 kPaとし、繰返し数をパラメータとして、CRを変化させた場合である。いずれの繰返し数においてもCR=3での発光強度が最も強く放電が安定で、CR=4

では放電が不安定なことが推測できる。図5(b)はCR=3、ガス成分HCl/He = 0.4/274.7 kPaのときXe分圧をパラメータとして、繰返し数を1~4 kHzまで変化させた場合のスペクトル強度を示す。繰返し数2 kHz以下では、Xe分圧の増加とともに発光強度も増すが、繰返し数3 kHz以上では、Xe分圧を増加させて3.47 kPaにすると、発光強度が低下する。このとき目視では可視光で白いストリーマ状の放電が観測され、放電の不安定発生に対応すると考えられる。このことはXe励起効率が大幅に低下したことに対応することから、Xe*からの発光スペクトル強度の変動をもって、放電の不安定性を定量的に考察することにしたい。

図3 放電部中央付近のガス密度変化率
Fig.3. Gas density fluctuation rate around the center of the discharge area

図4 上流側の予備電離電極の放電による密度変化量
Fig.4. Gas density fluctuation caused by upstream pre-ionization-discharge

(a)

(b)

図5 Xe* に対応する 465 nm 付近の発光スペクトル

(a) HCl/Xe/He = 0.4/3.5/274.7 kPa

(b) CR = 3, HCl/He = 0.4/274.7 kPa

Fig.5. Spectra around 465 nm related to Xe*

図6は、それぞれ図5の放電発光スペクトルから求めた発光強度である。図6(a)では繰返し数3 kHzまで安定した発光スペクトルを示すCR = 3での発光強度で規格化した。CR = 2, 4では上流側の予備電離放電の影響で放電が不安定、特にCR = 4ではガス流速が速いにもかかわらず最も不安定だった。これは、CR = 4では予備電離放電による密度乱れの領域が、1ショット後の放電点弧時に主

放電部に達するのに対し、CR = 2では2ショット後の放電点弧時に主放電部に達するので、CR = 4の方が密度乱れ量がより大きくなるためと考えられる。CR = 5もガス流速が速いにもかかわらず、放電が不安定であるが、これも予備電離放電による密度乱れの一部が主放電部に影響するためと考えられる。図6(b)では繰返し数4 kHzまで目視の範囲内では放電が安定なXe分圧1.07 kPaで規格化した。繰返し数2 kHzまではXe分圧の増加とともに発光強度が増加するが、繰返し数が3 kHz以上になると、発光強度が減少することがわかる。

(a)

(b)

図6 発光スペクトル強度 (波長 465 nm 付近)

(a) HCl/Xe/He = 0.4/3.5/274.7 kPa (b) CR = 3

Fig.6. Intensity of emission spectra (around 465 nm)

4. 検討

前章までの結果をまとめると以下になる。CR = 2, 4では上流側の予備電離放電による密度乱れが生じた部分が主放電部に到達したときに後続の放電が点弧する条件で

放電が不安定、CR = 3 では密度乱れの影響を受けにくい
ため放電が安定となる。しかしながら、CR = 3 でもXe分
圧 3.47 kPa 以上で、繰り返し数 3 kHz 以上の場合、放電
は不安定になる。

はじめに、放電部の密度乱れ量と発光強度との関係につ
いて検討する。例えば図6 (a)で CR = 4 のとき、繰り返し
数 2 kHz での発光強度は 22 %、繰り返し数 3 kHz では
10 %である。図4で示した上流側の予備電離放電により発
生する密度乱れは、経過時間を放電間隔に対応させると、
繰り返し数 2 kHz のとき、1.3 %、繰り返し数 3 kHz で
2.5 % になる。繰り返し数が高いほど、次の放電までに密
度乱れ領域が拡散する時間が短く、密度乱れ量が多い。予
備電離放電による密度乱れが大きく残っている場合は放電
が不安定になるため、放電発光が弱くなると推測できる。

次に、密度乱れが測定限界 0.3 % 以下である CR = 3 の
場合について検討する。この場合、CR = 3 での発光強度
は図6 (b)に示すように、Xe 分圧および繰り返し数を増加
させると弱くなるため、Xe 分圧と繰り返し数に着目する。
放電安定性と放電形成の状況を決定づけるパラメータであ
る、電離係数、付着係数、再結合係数等は、換算電界によ
り決まる⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。電界強度が均一のとき、ガス密度の偏り
と放電入力エネルギー密度の偏りは、次式で表される⁽¹¹⁾。

$$\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon} = -\xi \frac{\Delta N}{N} \quad \dots (5)$$

ここで、 ϵ は放電部全体の放電入力エネルギー密
度の平均値、 $\Delta \epsilon$ はその変化分、 ξ は主に (E/N)
とガス成分で決まる放電形成プロセス (直接電離、
二段階電離) に支配されるパラメータ、 ΔN はガス
密度の変化分である。

(5) 式から、局所的な低ガス密度部分 ($\Delta N < 0$) に放電
エネルギーは集中しやすいこと、エネルギーの偏り方はガ
ス成分に依存した係数 ξ で決まること等が定性的に説明で
きる。 ξ の値が大きいと、密度変化分 ΔN が等しくてもエ
ネルギーの変化 $\Delta \epsilon$ は大となり、放電が集中しやすい。

Baranov 等⁽²⁾⁽³⁾ は、 ξ はガス成分等に依存すると仮定し
ているが、繰り返し動作の影響は考慮されていない。そこ
で筆者らは、新たに繰り返し動作での ξ を示す方法を考案
した。その内容を次式で示す。

$$\xi = \frac{\epsilon_0}{\epsilon} + \frac{\epsilon_1}{\epsilon} + \ln\left(\frac{n_{e2}}{n_{i0} + n_{e1}}\right) \cdot \nu_i \cdot \frac{\epsilon_2}{\epsilon} \\ + f(P_{Xe}, n_{i0} + n_{e1}, n_{e3}) \cdot \frac{\epsilon_3}{\epsilon} \quad \dots (6)$$

ここで ϵ_0 は、予備電離放電開始前に存在するイ
オン等の荷電粒子数に対応するエネルギー、 ϵ_1
は予備電離に消費されるエネルギー、 ϵ_2 は放電
形成時に消費されるエネルギー、 ϵ_3 は放電点弧
により消費されるエネルギー、 $\epsilon = \epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3$ 、
 n_{i0} は予備電離放電開始前に存在する荷電粒子密
度、 n_{e1} は予備電離電子密度、 n_{e2} は放電点弧直

前の電子密度、 n_{e3} は放電点弧後の電子密度、
 ν_i は電離係数、 P_{Xe} は Xe 分圧をそれぞれ示す。
また、 f は関数である。

繰り返し動作に関連づけられるのは、(6) 式第 1 項の
(ϵ_0/ϵ) で、前回の放電により残留する荷電粒子の影響を
示す。その他の項にも繰り返し動作に影響する n_{i0} が含ま
れている。低繰り返し動作で前回の放電の影響が小さいと
き、エネルギー注入は全放電領域にわたり一様となるため、
エネルギーの偏りを示す (5) 式の左辺は小さく、放電は
安定となる。

前回の放電により残留する荷電粒子密度は高木ら⁽⁷⁾ に
よると、繰り返し数 4 kHz の放電間隔に相当する 250 μ s
経過後の Xe_2^+ および Cl^- の密度は 10^8 cm⁻³ 以上とな
り、予備電離により生成される電子密度に近い値となっ
ている。これは、(6) 式第 1 項の (ϵ_0/ϵ) の値が第 2 項
の (ϵ_1/ϵ) の値に匹敵するほど高くなり、(5) (6)
式から放電不安定性を引き起こす原因になることがわかる。
繰り返し数が低いと、放電間隔時間経過後の荷電粒子密度
は予備電離電子密度より小さくなり、放電が安定になるこ
とが推測できる。従来の Baranov 等の理論にはなかった放
電点弧前の荷電粒子の存在を、筆者らは (6) 式で新たに
考慮しており、Xe 分圧が放電安定性に与える影響がわか
る。

5. まとめ

1 ~ 4 kHz の高繰り返し運転時の XeCl エキシマレーザ
の放電部の密度変化と放電発光スペクトルを測定し、以下
のような結論を得た。

(1) 放電発光スペクトルを CR = 2 ~ 5 で観測した結
果、放電は CR = 3 で最も安定、CR = 4 で最も不安定だ
った。これは、上流側の予備電離放電による密度乱れが主
原因であることがわかった。

(2) CR = 3 でも Xe 分圧が高い場合、2 kHz 以下の低
繰り返し数では放電が安定であるが、3 kHz 以上の高繰
返し数になると、放電が不安定だった。この理由として、
Xe 分圧および繰り返し数が高いとき、前回の放電により残
留する荷電粒子の存在が放電不安定性を引き起こす一因に
なることを推測し、新しいモデルを提案した。

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 6 年 2 月 25 日受付)

文 献

- (1) M.L.Sentis, B.M.Forestier, and B.L.Fontaine: "Parametric studies of X-ray preionized discharge XeCl laser at single shot and high pulse rate frequency (1kHz)", J.Appl.Phys., 66, 1925(1989)
- (2) V.Yu.Baranov, V.M.Borisov, A.Yu.Vinokhodov, F.I.Vysikailo and Yu.B.Kiryukhin: "Increase in the repetition frequency of XeCl laser pulses of 1kHz", Sov.J.Quantum Electron., 14, 558(1984)
- (3) V.Yu.Baranov, D.D.Malyuta, V.S.Mezhevov, and A.P.Napartovich: "Influence of gas density perturbation on the ultimate characteristics of pulse-periodic lasers with ultraviolet preionization", Sov.J.Quantum Electron., 10, 1512 (1980)
- (4) V.Yu.Baranov, S.A.Kazakov, D.D.Malyuta, V.S.Mezhevov, A.P.Napartovich, V.G.Nisiev, M.Yu.Orlov, A.I.Starodubtsev, and A.N.Starostin: "Average power limitations in high-repetition-rate pulsed gas lasers at 10.6 and 16 μm ", Appl. Opt., 19, 930(1980)
- (5) 流れの可視化ハンドブック, 朝倉書店
- (6) 高木・柿崎・岡本・佐藤・後藤: 「高繰返しエキシマレーザの開発 - 3kHz, 135W 動作 -」, レーザー研究, 20, 91(1992)
- (7) 高木・柿崎・岡本・佐藤・後藤: 「高繰返しエキシマレーザの開発 - Xe 分圧低減による 4kHz, 200W 動作 -」, レーザー研究, 21, 567(1993)
- (8) H.M.Roswhite et al. "Atomic and molecular physics", American Institute of Physics Handbook, 7-27, 1982
- (9) A.Ishii, Y.Okita, K.Yasuoka, T.Tamagawa, S.Nakagawa, and I.Ohshima: "Uniform Field Electrodes for High-Power and High-Repetition TEA-CO₂ Lasers", Jap.J.Appl.Phys., 32, 88(1993)
- (10) Marc L.Sentis, Philippe Delaporte, Bernard M.Forestier, and Bernard L.Fontaine: "Design and Characteristics of High Pulse Repetition Rate and High Average Power Excimer Laser Systems", IEEE J.Quantum Electronics, 27, 2332(1991)
- (11) V.M.Borisov, Y.B.Kiryukhin, I.V.Kochetov, and V.P.Novikov, "Electron kinetics and acoustically induced inhomogeneities of the energy deposited in a pulse-periodic XeCl laser", Sov.J.Quantum Electron, 15, 1081 (1985)

石井 彰

(正員) 昭和 37 年 4 月 19 日生。昭和 63 年 3 月東京工業大学大学院電気電子工学専攻修士課程修了。同年(株)東芝入社。パルス CO₂ レーザ, エキシマレーザの研究開発に従事。現在, 同社重電技術研究所電力技術開発部放電応用技術担当所属。レーザー学会, 応用物理学会会員。

安岡 康一

(正員) 昭和 30 年 9 月 22 日生。昭和 58 年 3 月東京工業大学大学院電気電子工学専攻博士課程修了。同年(株)東芝入社。パルスレーザの研究開発に従事。工学博士。現在, 同社重電技術研究所電力技術開発部放電応用技術担当主査。レーザー学会, 応用物理学会, IEEE 学会会員。

丹羽 景子

(非会員) 昭和 41 年 8 月 20 日生。平成 3 年 3 月静岡大学大学院物理学専攻修士課程修了。同年(株)東芝入社。パルス CO₂ レーザ, エキシマレーザの研究開発に従事。現在, 同社重電技術研究所電力技術開発部放電応用技術担当所属。レーザー学会員。

坂野 美菜

(正員) 昭和 39 年 6 月 28 日生。平成元年 3 月神戸大学大学院化学専攻修士課程修了。同年(株)東芝入社。エキシマレーザ, レーザ応用の研究開発に従事。現在, 同社重電技術研究所電力技術開発部放電応用技術担当所属。応用物理学会会員。

玉川 徹

(正員) 昭和 18 年 12 月 8 日生。昭和 37 年 3 月函館工業高等学校卒業。同年(株)東芝入社。真空遮断器, パルス CO₂ レーザ, エキシマレーザの研究開発に従事。工学博士。現在, 同社重電技術研究所電力技術開発部放電応用技術担当課長。レーザー歯科学会会員。

大島 巖

(正員) 昭和 21 年 4 月 28 日生。昭和 44 年 3 月九州工業大学卒業。同年(株)東芝入社。高電圧開閉装置, 真空遮断器, 高電圧サイリスタバルブ, 大出力レーザおよびパルスパワー技術に関する研究に従事。工学博士。現在, 同社重電技術研究所電力技術開発部長。IEEE 学会会員。