KrF エキシマガスにおける放電開始特性の定量化

正員 齊藤 善夫 (三菱電機)

正員 佐藤 行雄 (三菱電機)

正員 殖栗 成夫 (三菱電機)

Quantification of the Breakdown Characteristics in KrF Excimer Gas

Yoshio Saitoh, Member, Yukio Sato, Member, Shigeo Ueguri, Member (Mitsubishi Electric Corporation)

The analysis of the breakdown characteristics in KrF excimer gas with a charge transfer circuit is made. We calculate the breakdown characteristics assuming a zero-dimensional uniform plasma in the prebreakdown region. And we measured them in the range of 0.3~6.0% Kr, 0.1~0.25% F₂ and 0.24~0.36 MPa total pressure.

The measured and calculated breakdown characteristics are in a good agreement, then we explain principal factors controlling the breakdown. The results are as follows, (1) the electron multiplication process in the prebreakdown region is mainly controlled by the direct ionization of Kr and dissociative attachment of F₂, (2) the breakdown voltage has a minimum value with the variation of Kr partial pressure, and this characteristic corresponds to the variation of the ionization collision frequency, (3) the breakdown voltage increases with F₂ partial pressure, and this is caused by the reduction of the electron multiplication due to the dissociative attachment, (4) the breakdown voltage increases with the total pressure, and this is caused by the reduction of the electron multiplication due to the decrease of the reduced electric field E/N .

キーワード：放電開始特性，電子増倍，電離衝突，解離性付着衝突，エキシマレーザ，容量移行型回路

1. ま え が き

エキシマレーザはパルスごとに主電極間の絶縁破壊過程を繰り返すため，放電開始電圧の定量化が装置設計上の重要な課題となる。例えば通常用いられる容量移行型回路は，一次ループから二次ループへのパルス圧縮機能をもつ。本回路方式では，主放電の放電開始現象が二次ループのスイッチ動作をかねるため，二次コンデンサへの移行エネルギーは放電開始電圧で規定される。また放電開始電圧は，電極部が経験するほぼ最大の電圧であり，装置の絶縁設計の面からも放電開始電圧の制御を目的とした放電機構の解明が必要とされる。

現在，エキシマレーザにおける放電開始電圧のガス組成，全圧力，電極間依存性は，実験結果よりほぼ推定されるようになっている。しかし，放電物理の面からエキシマレーザの放電開始機構を解析した報告^{(1)~(5)}は少なく，放電開始機構には不明な点が多いのが現状である。

エキシマレーザの放電開始特性は，主放電に先立ち行われる予備電離により制御されている。本論文では，予備電離で制御された放電開始過程を零次元プラズマモデル^{(6)~(13)}により定量化し，放電抵抗の減少に伴う電極間電

圧の変化を検出することによる放電開始特性の定量化を試みる。また予備電離で制御された放電開始特性に対し，衝突電離による電子増倍が支配的な要因であることを示す。更に放電開始特性のガス分圧，全圧力依存性の定量化およびそれらを支配する放電開始機構について報告する。

2. 放電開始特性の定量化

〈2・1〉 エキシマレーザ放電のモデル化 本論文では，沿面コロナ予備電離方式による容量移行型回路のエキシマレーザ装置を用いて解析および測定を行った。放電部はChang型構造⁽¹⁴⁾の陽極と多数の開孔を有する平板開孔構造の陰極から構成されている⁽¹⁵⁾。主放電に先立ち開孔部に沿面コロナ放電を発生させ，ここから発生する紫外光により放電領域を予備電離する。

解析に用いた等価回路を図1に，回路定数および放電形状を表1に示す。ここで， L_1 は一次ループの構造的インダクタンスとサイクロトロンスイッチに内在するインダクタンスの和， R_1 は同抵抗， L_2 は二次ループの構造的インダクタンス， R_d は放電抵抗である。また解析対象とした放電条件は，電極間隔1.2 cm，Kr分圧率0.1~6.0%，F₂分圧率0.1~0.4%，全圧力 $P_0=0.20\sim0.41$ MPa，緩衝ガ

図 1 容量移行型回路の等価回路

Fig. 1. Equivalent circuit of the charge transfer circuit.

表 1 回路定数と放電形状

Table 1. Circuit parameters and the dimension of the discharge.

C_1 / C_2	12 / 12nF
L_1 / L_2	270 / 8nH
R_1	2.8Ω
電極間隔 有効放電長 放電幅(2・2節参照)	$d = 1.2\text{cm}$ $L = 40\text{cm}$ $W = 0.5\text{cm}$

ス Ne である。

本解析では、回路方程式、ボルツマン方程式、レート方程式を連立させることにより放電開始特性を定量化した^{(6)~(9)}。励起放電は全計算時間中零次元均質プラズマを仮定し、ストリーマの発生、電荷の極在化、アーク転移などは考慮していない。

ボルツマン方程式は、2項近似展開による定常モデルを用いた。これは、エキシマレーザ放電では気圧が数気圧のため、電子の運動量緩和時間は 10 ps 程度、エネルギー緩和時間は ns 程度となるためにほぼ妥当と考えられる⁽¹⁶⁾。放電開始前領域では、空間電荷密度分布が顕著でなく陰極シースが形成されていないため⁽¹⁷⁾、放電場の電界 E は電極間電圧 V_{gap} から直接に算出した ($E = V_{\text{gap}}/d$)。

回路方程式における放電抵抗は次式により算出した。

$$R_d = d / (e N_e S \mu_e) \quad (1)$$

ここに、 R_d : 放電抵抗, e, N_e : 電子電荷, 数密度,

S : 電界に垂直な放電断面積, μ_e : 電子移動度

電子数密度 N_e はレート方程式から、電子移動度 μ_e はボルツマン方程式からそれぞれ計算される。また放電断面積 S は、表 1 の有効放電長 L と放電幅 W (2・2節参照) の積とし一定値を仮定した。

レート方程式では、中性原子、励起原子、イオン、光子およびそれらの反応式を考慮した^{(6)(7)(10)~(12)}。ここで、電子についてのレート方程式は次式となる。

$$\frac{dN_e}{dt} = \sum k_{ei} N_i N_e + \sum k_{pe} N_i N_j + \sum c \sigma_j N_j N_{ph} - \sum k_a N_j N_e \quad (2)$$

ここに、 N : 粒子数密度, 添字 e, ph : 電子, 光子を表す, 添字 i, j : 各反応に関与する準位を表す, k : 反応速度定数, 添字 ei, pe, a : 電子衝突電離, Penning 電離, 解離性電子付着を表す, c : 光速, σ : 光電離断面積

(2)式右辺第 1 項は電子衝突による直接および累積電離, 第 2 項は Penning 電離, 第 3 項は光電離, 第 4 項は

表 2 電離, 付着反応

Table 2. Reaction of the ionization and the attachment.

直接電離	
[1] Ne + e	$\rightarrow \text{Ne}^+ + 2e$
[2] Kr + e	$\rightarrow \text{Kr}^+ + 2e$
[3] F ₂ (0) + e	$\rightarrow \text{F}_2^+ + 2e$
累積電離	
[4] Ne* + e	$\rightarrow \text{Ne}^+ + 2e$
[5] Ne ₂ * + e	$\rightarrow \text{Ne}_2^+ + 2e$
[6] Kr* + e	$\rightarrow \text{Kr}^+ + 2e$
[7] Kr ₂ * + e	$\rightarrow \text{Kr}_2^+ + 2e$
[8] F ₂ (V) + e	$\rightarrow \text{F}_2^+ + 2e$
Penning電離、励起原子衝突電離	
[9] Ne* + Kr	$\rightarrow \text{Kr}^+ + \text{Ne} + e$
[10] Ne* + Kr	$\rightarrow \text{NeKr}^+ + e$
[11] Ne ₂ * + Kr	$\rightarrow \text{Kr}^+ + 2\text{Ne} + e$
[12] Ne ₂ * + Kr	$\rightarrow \text{NeKr}^+ + \text{Ne} + e$
[13] Ne* + Ne*	$\rightarrow \text{Ne}^+ + \text{Ne} + e$
[14] Kr* + Kr*	$\rightarrow \text{Kr}^+ + \text{Kr} + e$
[15] Kr ₂ * + Kr ₂ *	$\rightarrow \text{Kr}_2^+ + 2\text{Kr} + e$
光電離	
[16] Ne* + ph	$\rightarrow \text{Ne}^+ + e$
[17] Kr* + ph	$\rightarrow \text{Kr}^+ + e$
[18] F ₂ * + ph	$\rightarrow \text{F} + e$
解離性付着、解離性再結合	
[19] F ₂ (0) + e	$\rightarrow \text{F}^- + \text{F}$
[20] F ₂ (V) + e	$\rightarrow \text{F}^- + \text{F}$
[21] KrF* + e	$\rightarrow \text{Kr} + \text{F}^-$
[22] Ne ₂ * + e	$\rightarrow \text{Ne}^+ + \text{Ne}$
[23] Kr ₂ * + e	$\rightarrow \text{Kr}^+ + \text{Kr}$
[24] NeKr* + e	$\rightarrow \text{Kr}^+ + \text{Ne}$

解離性電子付着を表す。本解析で考慮した電離, 電子付着反応を表 2 に示す。表 2 中 Ne*, Kr* は準安定準位, F₂(V) は $V=1, 2, 3$ の振動励起準位, ph は光子を示す。また予備電離による初期電子数密度 N_{e0} は $1.0 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$ の一定値を仮定した (2・2節参照)。

本論文では、陰極からの二次電子放出⁽¹⁸⁾は考慮しなかった。これは放電開始時間が 200 ns 以下の領域であり、イオンによる二次電子放出はほとんど期待されないこと⁽⁵⁾, 光子による電子放出は放電開始前には影響しないと推定されること⁽¹⁷⁾を根拠とする。

回路方程式とレート方程式は時間に関する微分方程式であり、これらの計算中に電極間電圧 V_{gap} が 0.5% 変化するとボルツマン方程式を呼び出し、反応速度定数と電子移動度を再計算している。ボルツマン方程式に用いた衝突断面積は文献 (19)~(26), レート方程式に用いた反応係数は文献 (6), (7), (10)~(12)を参照した。

2・2 放電開始特性の定量法 本解析による各部の電圧, 電流, 電子数密度, 放電抵抗の時間変化を図 2 に示す。 $t=0$ で一次ループのスイッチを閉じると一次コンデンサ C_1 に充電された電荷は二次コンデンサ C_2 へ移行を開始する。このとき二次ループが開放と近似できる場合の C_2 コンデンサ電圧は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} V_2' &= V_{10} C_1 / (C_1 + C_2) [1 - \exp(-at)] \\ &\quad \times \{\cos \beta t + \alpha / \beta \sin \beta t\}, \\ \alpha &= R_1 / (2L_1), \\ \beta &= \{(C_1 + C_2) / (L_1 C_1 C_2) - \alpha^2\}^{1/2} \end{aligned} \quad (3)$$

図2 各部電圧、電流波形、電子数密度、放電抵抗 (計算値)

Fig. 2. Various voltage, current waveforms, electron number density, and discharge resistance (calculated value).

ここに、 V_2' : 二次ループが開放のときの C_2 コンデンサ電圧、 V_{10} : C_1 コンデンサ充電電圧

(3)式に従い V_2' が上昇する過程において、 $t=40$ ns (実測値に対応) において予備電離を開始すると予備電離電子は増倍を開始する。このときの放電抵抗は数百 M Ω であるために二次ループは開放とみなせ、かつ放電電流 I_2 が非常に小さく L_2 での電圧降下は無視できるために $V_2' \approx V_2 \approx V_{gap}$ である。電子増倍の結果電子数密度が約 10^{12} cm $^{-3}$ を超えると、(1)式による放電抵抗は 100 Ω 程度となり、二次ループの動作が各波形に与える変化が検出可能な値になる。すなわち、放電電流 I_2 が有限の値になり、かつそのために C_2 から放電部へ電荷が注入され V_2 は V_2' から離れる。更に L_2 での電圧降下のために V_{gap} は V_2 より急激に減少する。このように、本論文では放電状態を連続と仮定し、放電抵抗の急激な減少に伴う各部波形の変化が検出可能となる点を放電開始点 (t_b , V_b) と定義する。

本解析モデルでは、放電開始点の前後では各部波形の変化は連続的であり特異点をもたない。そのために、放電開始点を定義するには以下の近似法が考えられる。

- (i) 電極間電圧 V_{gap} の最大点
- (ii) 放電電流 I_2 が一定値を超えた点
- (iii) V_2' が V_2 と離れる、すなわち両者の差が一定値を超えた点

これらのうち (i), (ii) が物理的には理解しやすいと思われる。しかし測定値との比較を考えると、放電電流 I_2 は測定時のノイズ、ジッタによりその立上りを精度良く測定しにくく、また電極間電圧 V_{gap} の測定は装置の構造上の理由から困難である。そのため、本論文では (iii) の方法を採用した。すなわち測定においては V_2' を同時測定し V_2 と分離する点を放電開始点とし、計算においては V_2'

図3 C_2 コンデンサ電圧の時間変化

Fig. 3. Time dependence of the C_2 capacitor voltage.

と V_2 との差の割合 $(V_2' - V_2)/V_2'$ が 0.5% 以上となる点を放電開始点とした。この値には物理的意味はなく、測定値との比較により決定した。なお、この値を 0.1~1% と変化させたときの放電開始時間 t_b の推定誤差は 2 ns 以下、放電開始電圧 V_b の推定誤差は 2% 以下であり、放電開始点の定量にはあまり影響がないことを確認したが、放電開始前後で急激に変化する放電抵抗、電子数密度の定量には影響が大きい。この問題の検討は今後の課題とする。

本解析による C_2 コンデンサ電圧 V_2 の波形を測定波形とともに図3に示す。パラメータは C_1 コンデンサ充電電圧 V_{10} である。 V_{10} が低い場合を除き、計算波形と測定波形には良好な一致が見られ、本解析法の妥当性が確認される。 $V_{10}=11.1$ kV では、測定において放電開始点が不安定であった。また $V_{10}=11.1$ kV のように、 V_{10} が低い場合は電子増倍が遅れるために、放電開始点は V_2 の最大点より遅れる。このような場合、通常工学的には V_2 の最大点を放電開始点と考えるが⁽²⁷⁾、本論文ではより物理的な考察を行うために実際の放電開始点に注目した。

本解析法においては、計算に先立ち一部のパラメータを仮定している。これらのうち、 C_1 , C_2 は設定値、 L_1 , R_1 , L_2 は V_2' および I_2 の測定波形から推定される。また電極間隔 d 、有効放電長 L は設定または放電部の観察から得られ、それぞれほぼ信頼できる値である。しかし、放電幅 W と予備電離時の初期電子数密度 N_{e0} は測定が困難であり不確定である。そこでこれらの値が放電開始電圧 V_b に与える影響を確認した。放電幅 $W=0.25\sim1.0$ cm に対する V_b の推定誤差は 2% 以下、初期電子数密度 $N_{e0}=10^5\sim10^8$ cm $^{-3}$ に対する V_b の推定誤差は 7% 以下であった。このため、これらはある程度任意に推定してよいと考え、 W はレーザ発振幅 0.5 cm、 N_{e0} は 10^6 cm $^{-3}$ の一定値を仮

定した。測定値との比較によると、これらの推定誤差は本解析の範囲では殆ど問題にならないことを確認した。

〈2・3〉 電子増倍機構 図4にKr/F₂/Ne=1.5/0.1/98.4%の放電開始前領域（ここでは準安定原子数密度の存在比が 10^{-5} 以下の領域を考える。図6参照）の反応速度定数 k_j と電子移動度 μ_e を示す。Krの直接電離反応速度定数はNeに比べて3桁以上大きい。これはKrの電離エネルギー（13.99 eV）がNe（20.18 eV）より小さいこと、およびKrの電離衝突断面積がNeより大きいことによる。また、予備電離以後放電開始までの換算電界領域 $E/N=3\sim 14$ Td（ N ：全ガス密度、 $1\text{ Td}=10^{-17}\text{ V}\cdot\text{cm}^2$ ）では、電子移動度はほぼ一定である。これは主に弾性衝突が支配する全衝突周波数が E/N によりほぼ一定なためである。これより、ガス組成が一定ならば(1)式の放電抵抗はほぼ電子数密度 N_e に反比例することがわかる。

各種電子衝突における電子の損失エネルギーを図5に示す。各特性は単位時間・単位原子数密度当たりの電子衝突における損失エネルギーである。また全衝突損失エネルギーはそれらの総和であり、単位時間・単位原子数密度当たりの電界獲得エネルギーにほぼ対応する。図5より放電開始前領域ではKrの非弾性衝突による損失が支配的であり、また弾性衝突損失はNeが支配的であること、F₂によるエネルギー損失は直接励起衝突が支配的であることを確認した。

図6に各粒子数密度および電離、付着衝突周波数の時間変化を示す。予備電離以後放電開始までの時間領域では、Kr*, F₂(V)などの励起原子数密度は、最大でも基底原子Kr, F₂(0)数密度の 10^{-5} 以下である。そのため反応速度定

数 k_j と各原子数密度 N_j の積で定義される電離、付着衝突周波数は、主に基底準位の衝突反応で決定されていることが判明した。

また予備電離で発生する紫外光によりKr原子が励起され、その脱励起によりKrの準安定原子Kr*が生成されると仮定すると、累積電離（表2〔6〕）が電子増倍に影響

図5 放電開始前領域の衝突損失エネルギー
Fig. 5. Collision loss energies in the prebreakdown region.

図4 放電開始前領域の反応速度定数と電子移動度

Fig. 4. Rate coefficients and electron mobility in the prebreakdown region.

図6 粒子数密度、衝突周波数の時間変化
Fig. 6. Time dependence of the particle number density and collision frequencies.

響を及ぼすことも考えられる。そこで、予備電離時における準安定原子数密度 N_{Kr^*0} を変化させて図6に対応する計算を行った結果、 $N_{Kr^*0}=10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 以下であれば電子増倍にほとんど影響がないことを確認した。予備電離による電子数密度が $N_{e0}=10^6 \text{ cm}^{-3}$ 程度と考えると N_{Kr^*0} の生成が 10^{12} cm^{-3} 以上とは考え難く、かつこの場合、放電開始点の計算結果が測定値と合致しないために、 N_{Kr^*0} は 10^{12} cm^{-3} 以下と推定した。よって、放電開始前領域では累積電離は無視できると考えられる。更に Ne の直接電離、Penning 電離、および予備電離以後の光電離はほぼ無視できることを確認した。

すなわち、放電開始前の電子増倍過程は、Kr の直接電離 (表2 [2])、 $F_2(0)$ の解離性電子付着 (表2 [19]) が支配的であるため、(2)式の電子増倍の式は以下に近似できる。

$$\begin{aligned} dN_e/dt &\approx \kappa_{ion} N_{Kr} N_e - \kappa_{att} N_{F_2} N_e \\ &= (\kappa_{ion} N_{Kr} - \kappa_{att} N_{F_2}) N_e \\ &= (\nu_{ion} - \nu_{att}) N_e \\ \nu_{ion} &\equiv \kappa_{ion} N_{Kr}, \quad \nu_{att} \equiv \kappa_{att} N_{F_2} \end{aligned} \quad (4)$$

ここに、 ν : 衝突周波数、添字 ion, att: Kr 直接電離、 $F_2(0)$ 解離性電子付着、添字 Kr, F_2 : Kr, $F_2(0)$

以後の本論文の計算では、表2に示した反応機構をすべて考慮して計算を行ったが、電子増倍機構の考察では(4)式の衝突周波数の大小を論ずることにする。

3. 放電開始特性のガス分圧、圧力依存性

<3・1> Kr 分圧率依存性⁽²⁸⁾ 図7、図8に $F_2=0.1\%$ 、全圧力 $P_0=0.36 \text{ MPa}$ の放電開始電圧の Kr 分圧率依存性を示す。ともに計算値と測定値には良好な一致が見られる。図7は印加電圧 V_{i0} 特性である。図より $Kr=0.1\sim 1.0\%$ では Kr 分圧率の増加に伴い放電開始電圧 V_b は減少するが、 $Kr=1.5\sim 6.0\%$ では Kr 分圧率の増加に伴い V_b は増加する。後者の特性は溝上等の報告例⁽²⁹⁾と同様の傾向である。

図8は放電開始時間 t_b 特性であり、図3における各放電開始点 (t_b, V_b) を結んだ特性に対応する。すなわち、図中 V_b と t_b の関係は、 C_1 コンデンサ印加電圧 V_{i0} に応じて(3)式の関係を満たす。 $Kr=0.1\sim 1.0\%$ では Kr 分圧率の増加に伴い V_b は減少し、 $Kr=1.5\sim 6.0\%$ では Kr 分圧率の増加に伴い V_b は増加する。

更に V_b の Kr 分圧率特性を図9に示す。 $V_{i0}=16 \text{ kV}$ 以上では V_b は $Kr=1\%$ 付近に極小値をもつ。なお、 $V_{i0}=15 \text{ kV}$ 以下では特性は極大値をもつが、これは図3の $V_{i0}=11.1 \text{ kV}$ の場合と同様に電子増倍が遅れるために放電開始点が V_2 の最大点より下がることに対応している。これらの特性は(4)式の衝突周波数と電子増倍の関係から説明される。

平均電子エネルギーと電子エネルギー分布の Kr 分圧率

図7 放電開始電圧の Kr 分圧率依存性(1)
: 印加電圧特性

Fig. 7. Dependence of the Kr partial pressure ratio on the breakdown voltage: (1) applied voltage characteristics.

依存性を図10に示す。Kr 分圧率の増加に伴い平均電子エネルギーは減少する。図5から確認できるように、これは Kr の非弾性衝突によるエネルギー損失が主因である。そのために Kr の電離エネルギー以上の電子の存在確率が減少し、Kr の直接電離反応速度定数 κ_{ion} は減少する。なお、 $E/N=1 \text{ Td}$ 以下では Ne の弾性衝突損失が支配的であるために平均電子エネルギーはほとんど変化しない。

そこで、Kr の直接電離反応速度定数 κ_{ion} 、Kr 原子数密度 N_{Kr} 、Kr 直接電離衝突周波数 ν_{ion} の Kr 分圧率依存性を図11に示す。非弾性衝突損失により κ_{ion} は Kr 分圧率の増加に伴い急激に減少する。一方、 N_{Kr} は Kr 分圧率に比例する。その結果、両者の積である ν_{ion} は Kr 分圧率 $0.5\sim 1.5\%$ 付近に極大値をもつことになる。すなわち、この領域では(4)式の右辺第1項が大きくなり電離しやすい状態となる。図11では、参考のために解離性付着衝突周

図 8 放電開始電圧の Kr 分圧率依存性 (2)
：放電開始時間特性

Fig. 8. Dependence of the Kr partial pressure ratio on the breakdown voltage: (2) breakdown time characteristics.

波数 ν_{att} も図示したが、これは Kr 分圧率に対し増加するが、その値は ν_{ion} に対して小さい。また、Kr 分圧率が減少すると Ne により電離衝突周波数の割合が増加するが、本解析のガス組成の範囲では電離に対する寄与は小さいことがわかる。

以上を電子数密度の時間変化と対応させたものを図 12 に示す。電子増倍過程は衝突周波数の変化に対応し放電開始特性の Kr 分圧率依存性が定量された。

〈3・2〉 F_2 分圧率依存性 図 13, 図 14 に $Kr = 1.5\%$, 全圧力 $P_0 = 0.36 \text{ MPa}$ の放電開始電圧の F_2 分圧率依存性を示す。これらも計算値と測定値には良好な一致が見られる。図 13 は印加電圧 V_{10} 特性, 図 14 は放電開始時間 t_b 特性である。 F_2 分圧率の増加に伴い放電開始時間 t_b は遅延するため放電開始電圧 V_b は増加する。

更に V_b の F_2 分圧率特性を図 15 に示す。 $V_{10} = 16 \text{ kV}$

図 9 放電開始電圧の Kr 分圧率依存性 (3)
：Kr 分圧率特性 (計算値)

Fig. 9. Dependence of the Kr partial pressure ratio on the breakdown voltage: (3) Kr partial pressure ratio characteristics (calculated value).

図 10 平均電子エネルギー、電子エネルギー分布の Kr 分圧率依存性

Fig. 10. Dependence of the Kr partial pressure ratio on the average electron energy and the electron energy distribution.

以上では V_b はほぼ直線的に増加する。 $V_{10} = 15 \text{ kV}$ 以下では減少するが、これは図 9 における低 V_{10} 部と同様の理由による。これらの特性も、(4) 式の衝突周波数と電子増倍の関係から説明される。

平均電子エネルギーと電子エネルギー分布の F_2 分圧率

図 11 電離反応速度定数, Kr 数密度, 電離・付着衝突周波数の Kr 分圧率依存性

Fig. 11. Dependence of the Kr partial pressure ratio on the rate coefficient, Kr number density, and the collision frequencies.

図 12 電子数密度, 衝突周波数の Kr 分圧率依存性

Fig. 12. Dependence of the Kr partial pressure ratio on the electron number density and collision frequencies.

図 13 放電開始電圧の F_2 分圧率依存性 (1)
: 印加電圧特性

Fig. 13. Dependence of the F_2 partial pressure ratio on the breakdown voltage: (1) applied voltage characteristics.

図 14 放電開始電圧の F_2 分圧率依存性 (2)
: 放電開始時間特性

Fig. 14. Dependence of the F_2 partial pressure ratio on the breakdown voltage: (2) breakdown time characteristics.

依存性を図 16 に示す。 F_2 分圧率の増加に伴い平均電子エネルギーは減少する。図 5 より, これは F_2 の直接励起衝突によるエネルギー損失が原因であることがわかる。 F_2 の直接励起エネルギーは低いために低 E/N 領域から F_2 分圧依存性が現われている。しかしながら, 本解析のガス組成の範囲では, F_2 分圧率は Kr 分圧率より 1 桁程度低いために F_2 分圧率依存性は図 10 の Kr 分圧率依存性よりわずかである。

そこで F_2 の解離性付着反応速度定数 k_{att} , F_2 原子数密度 N_{F_2} , F_2 解離性付着衝突周波数 ν_{att} の F_2 分圧率依存性

図 15 放電開始電圧の F_2 分圧率依存性 (3)
: F_2 分圧率特性 (計算値)

Fig.15. Dependence of the F_2 partial pressure ratio on the breakdown voltage: (3) F_2 partial pressure ratio characteristics (calculated value).

図 16 平均電子エネルギー，電子エネルギー分布の F_2 分圧率依存性

Fig.16. Dependence of the F_2 partial pressure ratio on the average electron energy and the electron energy distribution.

を図 17 に示す。 K_{att} は F_2 分圧率の増加に伴い増加するが、その増加割合はわずかである。一方、 N_{F_2} は F_2 分圧率に比例する。その結果両者の積である ν_{att} は F_2 分圧率に対しほぼ直線的に増加する。このように F_2 分圧率の増加に伴い F_2 の解離性電子付着が増加する結果、(4)式右

図 17 付着反応速度定数， F_2 数密度，電離・付着衝突周波数の F_2 分圧率依存性

Fig.17. Dependence of the F_2 partial pressure ratio on the rate coefficient, F_2 number density, and the collision frequencies.

図 18 電子数密度，衝突周波数の F_2 分圧率依存性

Fig.18. Dependence of the F_2 partial pressure ratio on the electron number density and collision frequencies.

辺は減少し電子増倍は抑制される。図 17 では参考のために、電離衝突周波数 ν_{ion} も図示したが、これは F_2 分圧率の増加に伴いわずかながら減少し、電子増倍を抑制する。

以上を電子数密度の時間変化と対応させたものを図 18 に示す。電子増倍過程は衝突周波数の変化に対応し放電開始特性の F_2 分圧率依存性が定量された。

〈3・3〉 全圧力 P_0 依存性 図 19, 図 20 に $Kr=1.5\%$, $F_2=0.1\%$, $Ne=98.4\%$ の放電開始電圧の全圧力 P_0 依存性を示す。これらも計算値と測定値には良好な一致が見られる。図 19 は印加電圧 V_{10} 特性、図 20 は放電開始時間 t_b

図 19 放電開始電圧の全圧力依存性 (1)
：印加電圧特性

Fig. 19. Dependence of the total pressure on the breakdown voltage: (1) applied voltage characteristics.

図 20 放電開始電圧の全圧力依存性 (2)
：放電開始時間特性

Fig. 20. Dependence of the total pressure on the breakdown voltage: (2) breakdown time characteristics.

特性である。 P_0 の増加に伴い放電開始時間 t_b は遅延するため放電開始電圧 V_b は増加する。

更に V_b の P_0 特性を図 21 に示す。 $V_{10}=18$ kV 以上では V_b はほぼ直線的に増加する。 $V_{10}=13$ kV 以下では減少するが、これは図 9 における V_{10} 部と同様の理由による。これらの特性も (4) 式の衝突周波数と電子増倍の関係から説明される。

この場合、ガス組成比が一定のため同じ換算電界 E/N に対する平均電子エネルギー、反応速度定数の値は同じである。しかし同じ電極間電圧 V_{gap} に対する E/N は P_0 に反比例する。図 4 に示したように、 Kr 直接電離の反応速度定数は、 E/N に対し急激な変化をするために、 P_0 の増加に伴い κ_{ion} は急激に減少する。一方、 Kr 原子数密度 N_{Kr} は P_0 に比例するが、その増加割合よりも κ_{ion} の減少割合のほうが大きいので、結果として ν_{ion} は P_0 の増加に対して減少し電子増倍は抑制される。以上を電子数密度の時間変化と対応させたものを図 22 に示す。電子増倍過程は衝突周波数の変化に対応し、放電開始特性の全圧力依存性が定量された。

なお、 P_0 をより低下させれば、 N_{Kr} の減少により ν_{ion} は減少し放電開始電圧は増加することが予測される。これは、Paschen 極小値の左側に対応するような低気圧領域で現われると予測され、エキシマレーザ発振の領域からはずれるために解析対象としなかった。

〈3・4〉 放電開始点における電子数密度、放電抵抗

図 12, 図 18, 図 22 では、放電開始点における電子数密度 N_e を丸印で図示している。これらは条件によらず $4.9 \sim 5.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ の範囲にあり、かつそのときの放電抵抗 R_d は $120 \sim 150 \Omega$ の範囲にある。これらのばらつきは、第 2 章で定義した放電開始点の定量法に伴う数値計算

図 21 放電開始電圧の全圧力依存性 (3)
：全圧力特性 (計算値)

Fig. 21. Dependence of the total pressure on the breakdown voltage: (3) total pressure characteristics (calculated value).

図 22 電子数密度，衝突周波数の全圧力依存性
Fig. 22. Dependence of the total pressure on the electron number density and collision frequencies.

の誤差を考えるとほぼ一定と推定できる。

本解析では，放電開始点を図 1 の等価回路の二次ループが開放とみなせるか否かで判定している。そのため，放電開始点における放電抵抗の値は，回路各部のインピーダンスとの大小により定量されうと考えられる。本論では表 1 の回路定数を一定としているが，回路定数および電極間隔依存性を含めた解析は今後の興味深い課題である。

また，放電開始時における電子数密度が一定となることは，以下の行村ら⁽⁴⁾⁽⁵⁾の放電開始条件，

$$\int_0^{\zeta_c} (\alpha - \eta) dx = \text{const.} \quad (5)$$

ここに， ζ_c ：電子なだれの進展長， α ：電離係数，

η ：付着係数， x ：陰極から陽極方向への座標

と定性的に一致する概念と思われ，本解析法との比較も今後の課題である。

4. ま と め

零次元定常均質プラズマモデルを用いて KrF エキシマレーザガス中の放電開始特性を解析し，以下の知見を得た。

(1) 電子数密度の増加に伴う放電抵抗の急激な減少を定量することにより，放電開始点を定量化した。結果は測定値と良好に一致し，予備電離で制御された放電開始の機構の解明と放電開始点の予測が可能となった。

(2) 放電開始電圧は，Kr 分圧率の増加に伴い極小値

をもつことが判明した。これは Kr 原子数密度と電離反応速度定数の積，すなわち電離衝突周波数の変化と対応する。Kr 分圧率が 1.0% 以下では Kr 原子数密度の減少を起因として Kr 分圧率の減少に伴い放電開始電圧は増加し，Kr 分圧率が 1.5% 以上では電離反応速度定数の減少を起因として Kr 分圧率の増加に伴い放電開始電圧は増加する。

(3) 放電開始電圧は F₂ 分圧率の増加に伴い増加することを確認した。これは解離性電子付着の増加により，電子増倍が抑制されるためである。

(4) 放電開始電圧は全圧力の増加に伴い増加することを確認した。これは換算電界 E/N の減少により，電子増倍が抑制されるためである。

(平成 7 年 4 月 28 日受付，同 7 年 7 月 19 日再受付)

文 献

- (1) M. M. Turner & P. W. Smith: *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **19**, No. 2, 350 (1991)
- (2) M. Bähr, W. Böttcher & S. Choroba: *ibid.*, **19**, No. 2, 369 (1991)
- (3) H. Lück, D. Loffhagen & W. Böttcher: *Appl. Phys. B*, **58**, 123 (1994)
- (4) 行村・窪田・内藤・加藤・川北・五井野：電学論 A, **109**, 9 (平成 7)
- (5) 行村・川上・人見：同上 A, **111**, 291 (平成 7)
- (6) H. Hokazono, K. Midorikawa, M. Obara & T. Fujioka: *J. Appl. Phys.*, **56**, No. 3, 680~690 (1984)
- (7) 水波・前田・内野・下村・宮副：レーザ研究, **9**, No. 5, 52 (昭 56)
- (8) M. Maeda, A. Takahashi, T. Mizunami & Y. Miyazoe: *Japan. J. Appl. Phys.*, **21**, No. 8, 1161 (1982)
- (9) 川上・行村：電気学会放電研資, ED-91-79, 21 (平成 3)
- (10) F. Kannari, M. Obara & T. Fujioka: *J. Appl. Phys.*, **57**, No. 9, 4309 (1985)
- (11) Y. W. Lee, E. Matsui, F. Kannari & M. Obara: *IEEE, J. Quant. Elect.*, **25**, No. 9, 2053 (1989)
- (12) F. Kannari, W. D. Kimura & J. J. Ewing: *J. Appl. Phys.*, **68**, No. 6, 15, 2615 (1990)
- (13) 狭間：レーザ研究, **22**, No. 2, 22 (平成 6)
- (14) T. Y. Chang: *Rev. Sci. Instrum.*, **44**, 405 (1973)
- (15) 永井・春田・佐藤・井上：レーザ学会会報, RTM-91-26, 15 (平成 3)
- (16) 齊藤・佐藤・藤川・井上・春田：電気学会放電研資, ED-94-63, 59 (平成 6)
- (17) H. Akashi, Y. Sakai & H. Tagashira: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **27**, 1097 (1994)
- (18) 例えば, B. N. Chapman (岡本幸雄訳)：プラズマプロセスの基礎, p. 76~88 (昭 60) 電気書院
- (19) 林：日本学術振興会プラズマ材料科学第 153 委員会編，プラズマ材料科学ハンドブック，付録 3 (平成 4) オーム社
- (20) M. Hayashi: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **15**, 1411 (1982)
- (21) D. F. Register, S. Trajmar & G. Steffensen: *Phys. Rev. A*, **29**, No. 4, 1793 (1984)
- (22) N. J. Mason & W. R. Newell: *J. Phys. B, At. Mol. Phys.*, **20**, 1357 (1987)
- (23) H. A. Hyman: "brief reports", *Phys. Rev. A*, **24**, No. 2, 1094 (1981)
- (24) D. Ton-That & M. R. Flannery: *Phys. Rev. A*, **15**, No. 2, 517 (1977)
- (25) M. Hayashi & T. Nimura: *J. Appl. Phys.*, **54**, No. 9, 4879 (1983)
- (26) J. N. Barsley & J. M. Wadehra: *J. Chem. Phys.*, **78**, No. 12, 15, 7227 (1983)
- (27) 例えば, 大木正路：高電圧工学, p. 81 (平成 4) 積書店
- (28) 齊藤・佐藤・植栗：第 42 回春応物学会講演予稿集, No. 1, 30p-TF-2, 32 (平成 7)
- (29) 溝上・行村：電気学会放電研資, ED-94-18, 99 (平成 6)

齊 藤 善 夫 (正員) 1991年3月北海道大学大学院工学研究科電子工学専攻博士課程修了。同年4月三菱電機(株)入社。現在、同先端技術総合研究所にてエキシマレーザの開発に従事。工学博士。レーザ学会、応用物理学会会員。

殖 栗 成 夫 (正員) 1974年3月東京大学大学院工学系研究科電気工学専攻修士課程修了。同年4月三菱電機(株)入社。アーク溶接機など放電応用装置、大出力レーザの開発を経て、現在、同生産技術センターにて電子回路基板の高密度実装技術の開発に従事。工学博士。レーザ学会、応用物理学会会員。

佐 藤 行 雄 (正員) 1980年慶應義塾大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了。同年4月三菱電機(株)入社。現在、同先端技術総合研究所勤務。大出力CO₂レーザ、エキシマレーザ、銅蒸気レーザの研究開発に従事。1991年レーザ学会奨励賞受賞。レーザ学会、応用物理学会会員。