レーザーオリジナル

He/F₂ 及び He/Ne/F₂ 混合ガスを用いた電子
ビーム励起高出力157nm F₂ レーザー

金 容平*・小原 實*・鈴木 登紀男*

(1985年 3月18日 受理)

High Power 157 nm F₂ Laser Pumped by Intense Electron
Beams Using the He/F₂ and He/Ne/F₂ Mixtures

Yong-Pyung KIM*, Minoru OBARA* and Tokio SUZUKI*

(Received March 18, 1985)

Using the intense electron beam excited mixtures of molecular fluorine and helium; we have developed a joule-level 157-nm F₂ laser. Maximum laser energy of 1.84 J with a pulse width of 35 ns (53 MW) and an intrinsic efficiency of 1.4 % was obtained using a 6 atm mixture of He/F₂=99.88/0.12 (%). It corresponds to 11.5 J of the laser energy extracted from the whole electron beam aperture of 9 cm in diameter. It is found for the first time that the Ne-addition to the normal He/F₂ mixture is very useful to decrease the high operating pressure of the mixture.

1. はじめに

最近, プラズマ計測 (共鳴散乱を用いた不純物測定等), 半導体超微細加工 (VLSI 加工) での高分解リソグラフィ, 光 CVD (Photo-Chemical Vapor Deposition),あるいは光化学などのレーザー応用面から, 真空紫外領域で動作する高出力レーザーの開発が強く要望されている^{1,2)}。

波長157nmに発振線を持つF₂レーザーは動作機構がエキシマレーザーに似ているため³⁾, 高出力高効率真空紫外レーザーとして期待される。

F₂レーザーの遷移は他のハロゲンレーザーと同じく, イオン結合のD' (³Π_{2g}) 準位と弱い共

有結合のA' (³Π_{2u}) 準位間のBound-Bound遷移である⁴⁾。遷移の中心波長はハロゲンレーザーの中では最短波長の157nmであるが, そのスペクトル線は150~160nmにわたっており, 波長可変レーザーとしての可能性も有している。現在までは156.71, 157.48, 157.59nmの3つの波長で発振が得られている^{4,5)}。レーザーの励起機構はまだはっきり究明されておらず,

の励起移乗反応 (Excitation Exchange) が主な生成反応であることが推測されているにすぎない^{4,5)}。

F₂レーザーの発振は1977年, Rice らによっ

* 慶応義塾大学理工学部電気工学科 (〒223 横浜市港北区日吉3-14-1)

* Department of Electrical Engineering, Keio University (3-14-1, Hiyoshi, Kohoku-ku, Yokohama, 223)

てはじめて報告された⁶⁾。彼らは He/F_2 の混合ガスを長パルス (850 keV, 20 kA, 300 ns FWHM) の電子ビームで励起し, 22 mJ の出力を得た。また, 1978 年には同じ研究グループが短パルス (1.9 MeV, 50 ns FWHM) の電子ビームで $\text{He}/\text{F}_2 = 7750/10$ (Torr) の高圧力の混合ガスを励起し, $7 \text{ MW}/\text{cm}^2$ の出力 (33 ns FWHM) を効率 2.6% で得た⁵⁾。一方, 放電励起によっても発振が得られ, Pummer ら⁷⁾ の 8.5 mJ の出力が報告されている。最近には, 出力 10 mJ 級のレーザーが商品として出ている⁸⁾。しかし, F_2 レーザーに関する研究はまだ初期段階にとどまっており, その励起機構, 動作特性などはほとんど解明されていない。

我々は, 短パルスの大強度電子ビームを用いて, He/F_2 の混合ガスを 53 MW (1.84 J, 35 ns) の F_2 レーザー出力を 1.4% の効率で達成した。さらに, He/F_2 に Ne を添加して電子ビーム阻止能を増加しそれによる全動作圧力低下をはかることを提案した。その結果比較的低下圧力の $\text{He}/\text{Ne}/\text{F}_2$ 混合ガスから, F_2 レーザーを発振できることが判明した。また, F_2 ($\text{D}'-\text{A}'$) の自然放出光, レーザー出力波形とガス混合比 (He/F_2 , $\text{He}/\text{Ne}/\text{F}_2$) の関係などのパラメータ特性についても報告する。

2. 実験装置

実験装置の概略を Fig. 1 に示すが, レーザー

装置は電子ビーム発生器系, ガスハンドリング系, 共振器系, 測定系の 4 つの部分から構成される。電子ビームの打ち込み方式は斜め打ち込み方式である。

電子ビーム発生器のダイオードには, カソードにカーボンクラファイト, アノードに厚さ $75 \mu\text{m}$ のチタン膜を用いた。電子ビームの尖頭電圧は 2 MeV, 尖頭電流は 80 kA であり, パルス幅 (FWHM) は 65 ns である。ダイオードから放出される電子ビーム (直径 9 cm の円形) はレーザー媒質に入る前に, 低圧 (空気 270 mTorr) のドリフト領域を通過する。この領域はガス圧力の変化に伴ってアノード膜がたわむことによる A-K 間のインピーダンスの変化, さらにには圧力によるアノード膜の破損などを防いでいる。隔膜 (Diaphragm) には厚さ $200 \mu\text{m}$ のステンレス鋼膜を用いた。また, 電子ビームのエネルギーを効果的にレーザー媒質に注入するため, 1.8 kG の外部磁界コイルを用いた。コイルは, 電子ビームガイド用コイル, 偏向コイル, ヘルムホルツコイルから構成されている。

ガスハンドリングシステム及びレーザー管は全てステンレス鋼製である。実験に入る前には常に 1 atm の He/F_2 混合ガス ($\text{F}_2 = \sim 200 \text{ Torr}$) をガスハンドリングシステム及びレーザー管に詰めて, 24 時間程度の不働態化を行った。用いた He ガスは純度 99.99995% の高純度であり, F_2 ガスは Air Product 社の製品である。

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus.

レーザー共振器は直径2インチのアルミニウム鏡を全反射鏡、直径3.6cm、透過率86%(波長157nmでの測定値)の高品質MgF₂板(MgF₂鏡, Acton社製)を出力鏡として用いて構成した。共振器は長さ310cm, 有効励起長は230cmである。また、電子ビームの直径は9cm(日東電気工業株式会社のラドカラーフィルムによる測定値)であるが、レーザーの取り出し体積は出力鏡の大きさ($\phi=3.6$ cm)によって決まり、2.34ℓである。

測定は大気中ではO₂などによる吸収が大きいので(157nmでO₂による吸収係数は約200/cm・atmである⁹⁾), 自己吸収の比較的小さいN₂の雰囲気で行った。レーザー及びEnd-Lightの波形測定にはパイプラー光電管(浜松ホトニクス, R1328U-04), エネルギーの測定にはカロリメーター(Gen-tec, ED-200)を用いた。

3. 結果及び検討

レーザーの出力特性は一般的に媒質の励起密度に大きく依存する。そこで、まず電子ビームの蓄積エネルギーを測定した。Fig. 2はHeを媒質として用い、圧力上昇法¹⁰⁾より求めた圧力に対する蓄積エネルギーの変化である。圧力に対

Fig. 2 Plots of deposition energy density in He as a function of pressure.

Fig. 3 Time behaviour of the beam current, F₂* end-light, and the F₂ laser output. The mixture of He/F₂ is 6 atm and the intensity is not scaled.

して蓄積エネルギーはほぼ線形で、6 atmで約63mJ/cm²である。

Fig. 3は6 atmのHe/F₂ (F₂=0.12%)を電子ビームで励起した時の電子ビーム電流波形, F₂*のEnd-Light及びF₂レーザーの発振波形である。F₂*のEnd-LightはFig. 1でMgF₂板の代りに吸収板, アルミニウム鏡の代りにMgF₂板をつけて測定した。F₂*のEnd-Lightとレーザーの発振波形を見るとレーザーの方がピーク値に達する時間が少しはやいが、両方の立ち上り, 立ち下り時間及びパルス幅はほとんど同じである。本実験で用いたレーザー管の有効励起長(230cm)が長いから、F₂*のEnd-LightがASEになっているためである。したがってレーザーの出力は共振器モードよりASEモードによって取り出されるものと考えられる。ここで、レーザー光及びEnd-Lightの半値幅(FWHM)は35nsで、電流パルス幅(FWHM)の約半分である。また、電流に対してレーザーの遅延時間は約30nsであることがわかる。この遅延時間は電子ビームがレーザー管内を伝播する時間とF₂レーザーの生成時間である。

Fig. 4 Dependence of the laser output energy on the F₂ concentration. The mixture of He/F₂ is 6 atm.

F₂レーザーの上準位 (D' , $^3\Pi_{2g}$) は(1)式によって生成されるから、レーザー出力のF₂初期濃度依存性を調べることは重要である。Fig. 4は全圧 6 atmでF₂濃度に対して測定したレーザー出力エネルギーの変化である。濃度0.06%まで出力は急激に増加する。これは、十分なF₂ (D') 分子を生成するためには濃度 0.06%以上のF₂が必要であることを意味するが、0.06%以下の濃度ではF₂のBurn-upのためF₂ (D') の生成が維持されないためである。また、濃度0.12%以上では緩やかであるが、レーザー出力は低下する。これは主にF₂による脱励起のためであろう。レーザーエネルギーの最大値は濃度0.06%から0.12%で得られ、1.84J (54MW) であった。この時の電気効率は1.4%である。

Fig. 5は全圧 6 atmで、F₂*の End-Light をF₂濃度に対して測定した結果である。この時の励起密度は0.86MW/cm²である。F₂濃度0.04%ではパルス幅 (FWHM) は長く、48nsである。これはF₂の量が少ないからF₂ (D') の生成時間が長くなるためと考えられる。また、濃度0.08%以上ではパルス幅の大きな変化は見られない

Fig. 5 Variation of F₂* end-light waveform with F₂ concentration.

Fig. 6 Dependence of the laser output energy and laser efficiency on the total pressure.

が、0.12%で35ns, 0.2%で約32nsである。一方、End-Lightの立ち上がり時間はF₂濃度に依存

しないが、立ち下り時間はF₂による脱励起のため、濃度が高くなるほど短くなる。

Fig. 6 はF₂濃度0.1%の混合ガスで、全圧に対して調べたレーザー出力エネルギーと効率の変化である。レーザーの出力エネルギーは圧力に対してほぼ線形であるが、Fig. 2 でわかるように電子ビームの蓄積エネルギーが圧力に対してほぼ線形であることから予想できる。一方、レーザーの効率も今回の実験で測定を行なった。6 atmまでは、直線的に伸びていることがわかる。F₂濃度0.12%の時、全圧3 atmと6 atmのHe/F₂混合ガスに対して測定したF₂*のEnd-Light 波形をFig. 7 に示す。全圧3 atmでの半値全幅は48nsで、6 atmでの35nsより長いことがわかる。これはF₂ (D') 準位の生成時間が圧力が低いほど長くなるためと考えられる。

Heの電子ビームの阻止能はバッファガスとして用いられる希ガスの中では一番小さく、Neの約1/5である。従ってHeをバッファガスとして使うとレーザーの動作圧力は高くなる。しかし、レーザーの実用化の面から考えると、高圧力動作は光学系や電子ビーム隔膜(Diaphragm)への負担などから大きな問題となる。そこで、He/F₂混合ガスに対して電子ビーム阻止能の大きいNeを添加し、動作圧力を低圧化することを提案する。Fig. 8 はHe/Ne/F₂の混合ガス(F₂=0.12%)で、電子ビームの蓄積エネルギーを“一定”にした時のNe濃度に対するF₂* End-

Fig. 7 F₂* end-light waveforms at the total pressure of 3 and 6 atm.

Lightの変化である。Ne濃度を増加するとパルス幅は長くなる。これはNeの添加によってF₂ (D') 分子の生成時間が長くなるためであると

Fig. 8 Variation of F₂* end-light waveforms on the Ne concentration.

Fig. 9 Dependence of the laser output energy on the total pressure and Ne concentration.

考えられる。Fig. 9にはFig. 8と同じ条件で測定したレーザー出力エネルギーの全圧及びNe濃度依存性を示す。また、比較のためHe/F₂ (F₂=0.1%) 混合ガスで測定したレーザー出力エネルギーの全圧に対する変化も示す。He/Ne/F₂ 混合ガスの場合、レーザーの出力エネルギーはNe濃度の増加と共に減少してくる。これは次のように説明できる。NeをHe/F₂混合ガスに添加した時、考えられる主な反応は

である。また、NeF*からは次の2つの反応が予想される。

(5)式で示されるNeF*の前期解離は、(1)式からわかるようにF₂(D')生成のPrecursorであるF₂(^{2,4}P)の生成につながるから損失にはならない。しかし、(6)式の108nmでの自然放出は寿命が2.6 nsと非常に短いので¹¹⁾、そのままエネルギーの損失となる。したがって、Neの添加によるエネルギーの減少は主にNeF*の自然放出のためと考えられる。一方、動作圧力に対するレーザー出力エネルギーの変化においてはHe/Ne/F₂, He/F₂混合ガス共に、圧力の低下によって減少する。He/F₂混合ガスの場合、全圧3atmと4atmでのレーザー出力エネルギーは、それぞれ0.21, 0.61Jで、全圧6atmでの出力エネルギー(1.48J)の約1/7, 1/2.4である。しかし、He/Ne/F₂混合ガスの場合には全圧3atmと4atmでのレーザー出力エネルギーがそれぞれ0.56, 0.88Jで、全圧6atm (Ne=0%)での出力エネルギー(1.84J)の約1/3.3, 1/2.1であるから全圧力に対するレーザー出力の減少割合が小さい。したがって、レーザーの電気効率は犠牲になるが、レーザーの動作圧力を下げるのにはNeの添加が効果的であることがわかる。

4. まとめ

大強度の電子ビーム装置を用い、真空紫外域の157nmでジュール級のF₂レーザーを開発した。最大出力は全圧6atm, F₂濃度0.12%のHe/F₂混合ガスを0.86MW/cm²の励起密度で励起した時得られ、1.84J/パルス、53MWであり、電気効率は1.4%であった。しかし、用いたアルミニウム全反射鏡は低品質であり、かつレーザーの出力もASEモードによって取り出されているので、157nmのレーザー発振波長でアルミニウム全反射鏡は効果的に働いていない。したがって、アルミニウム鏡を用いずに共振器の両面から出力を取り出すと、3.88J/パルス、106MWの出力と2.8%の電気効率が期待できる。また、得られた出力は出力鏡の大きさ(直径3.6cm)によって制限された値で、直径9cmの電子ビーム径全体に対して換算すると11.5J/パルス、330MWに達する高出力である。

さらに、レーザーの出力が動作圧力に比例してほぼ線形に増加することや今回の実験で測定を行なった6atmまではレーザーの効率も直線的に増加することから、高圧力化によりさらに高出力高効率化が可能を見通しを得た。

一方、光学系や電子ビーム装置への負担など、レーザーの実用化の時間問題になる高圧力の動作圧力を低圧力化するのには、Neの添加が効果的であることをはじめて明らかにした。

最後に、本研究を行なうにあたり、実験に協力していただいた、須田亮氏、榊原勝利氏、猪沢伸悟氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) J. C. White, H. G. Craighead, R. E. Howard, L. D. Jackel, R. E. Behringer, R. W. Epworth, D. Henderson and J. E. Sweeney: Appl. Phys. Lett. **44** (1982) 22.
- 2) G. A. Germany, G. J. Salamo and R. J. Anderson: J. Appl. Phys. **54** (1983) 4573.
- 3) M. McCusker: Rare gas excimers in Excimer Lasers, ed. by C. K. Rodes, (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, N. Y., Tokyo (1983).
- 4) M. Diegelmann, K. Hohla, F. Rebenstrost and K. L.

- Kompa: J. Chem. Phys. **76** (1982) 1233.
- 5) J. R. Woodworth and J. K. Rice: J. Chem. Phys. **69** (1978) 2500.
- 6) J. K. Rice, A. K. Hay and J. R. Woodworth: Appl. Phys. Lett. **31** (1977) 31.
- 7) H. Pummer, K. Hohla, M. Diegelmann and J. P. Reilly: Opt. Commun. **28** (1979) 104.
- 8) For Example, Lumonics Hyperex-400, Lumonics Inc. Ontario, Canada.
- 9) E. C. Y. Inn: Spectrochim. Acta **7** (1955-6) 65.
- 10) F. Kannari, A. Suda, M. Obara, T. Fujioka, K. Toyoda and S. Namba: Review of Laser Engineering **12** (1984) 11.
- 11) C. A. Brau: Rare gas halogen excimers in Excimer Lasers, ed. by C. K. Rhodes (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, N. Y., Tokyo), (1983).