特集

短パルスエキシマレーザー

渡 部 俊 太 郎*

(1987年10月9日 受理)

Short Pulse Excimer Lasers

Shuntaro WATANABE*

(Received October 9, 1987)

The present status of short pulse excimer lasers is described with an emphasis on XeCl, KrF and ArF. Main contents are (1) the gain spectra of excimer lasers, (2) short pulse generation and pulsedwidth measurement at the excimer wavelengths, (3) scaling of peak power with regard to absorption, amplified spontaneous emission, and dispersion of optical elements. Typical short pulse excimer laser systems are summarized. Finally the prospect of applications such as multiphoton process are presented.

Key Words: Short pulse excimer lasers

1. はじめに

エキシマレーザーは紫外域の高出力レーザーである。特にXeCl (308nm), KrF (248nm), ArF (193nm) はすぐれた性能を示す。エキシマレーザーは一般に bound-free 遷移であるためスペクトル幅が広い。Table Iに示すようにKrFとArFではフーリエ変換限界のパルス幅は数十fsである。しかしエキシマレーザーの利得の持続時間は短い。上準位の寿命が数nsと短いため一定の利得を得るための励起強度が高くなるからである。ふつう放電励起、電子ビーム励起を問わず、実用的な利得の持続時間は1μs以下である。適当な可飽和吸収体がないことも手伝って、このような短時間でスペクトル幅

Table I Bandwidth and pulsedwidth in excimer lasers.

Excimer	Wave-length	Band-width	Bandwidth-limited pulsedwidth	Present status
XeCl	308	120	130	160fs ¹⁾
KrF	248	550	27	81fs ³⁾
ArF	193	400	37	4ps ¹⁴⁾

* ガウス形を仮定

全幅でモード同期を得ることは非常に難しい。直接モード同期で得られるパルス幅は100ps程度である。したがってps, fsパルス源は、可視域の色素レーザー (エキシマレーザー励起分布帰環型レーザー, シンクポンプレーザー, CPM (Colliding Pulse Modelocking) レーザ

* 東京大学物性研究所 (〒106 東京都港区六本木7-22-1)

* Institute for Solid State Physics, University of Tokyo (7-22-1ゴRoppongi, Minato-ku, Tokyo 106)

ーなど)を波長変換することによって得、エキシマレーザーは増幅器として使用する場合が多い。エキシマレーザーはps, fsパルスの増幅器としてすぐれた特徴をもつ。広帯域、高利得はもちろんであるが、ガラスレーザーや色素レーザーと異なり、気体レーザーであるため、自己位相変調の原因となる非線型効果が起こりにくいこと、大断面積化が容易であることなどである。利得の時間幅も ASE (Amplified Spontaneous Emission) の抑制やターゲットからの後方散乱光とのdecouplingのためにも、同期ジッターの許す範囲で短い方がよい。通常の数10 nsは適当な範囲である。

現在、商品型のシンクポンプ色素レーザーと何台かのエキシマレーザーを組み合わせることにより数十GWの出力が容易に得られる。パルス幅もXeClでは既にフーリエ限界に達している^{1,2)}, KrFでも紫外域でのパルス圧縮で81 fsが得られている³⁾。ArFでも同様なことが可能である。増幅器の口径を拡大することにより既に繰返しでTW近い出力が得られており³⁾, single shot deviceでは10TW以上の出力も可能である。このようにエキシマレーザーは紫外域での超短パルス高ピーク出力の標準的なシステムとなった。その用途はまず多光子過程への応用である⁴⁾。100光子以上の過程が、多光子イオン化の実験で確認されている。この過程はXUVレーザーへの新たなアプローチとなろう。

この論文では(1)エキシマレーザーのスペクトルと利得, (2)UV超短パルスの発生と計測, (3)エキシマレーザーの超短パルス増幅, (4)その応用についてまとめた。

2. エキシマレーザーのスペクトルと利得

前述のごとく、超短パルス増幅のためには、エキシマのスペクトルと利得幅内の緩和が重要である。エキシマのスペクトルは、bound-free 遷移と bound-bound 遷移に大別される。KrF, ArFは前者に属し、XeClは後者に属する。Fig. 1, 2にXeClとKrFの利得のスペクトル分布を示す^{5,6)}。Fig. 1は小信号利得係数 g_0

Fig. 1 Gain spectrum in XeCl. The peaks correspond to $B(v=0) \rightarrow X(v=0, 1, 2, 3)$ from the left hand respectively.

Fig. 2 Gain spectrum in KrF. The dip is due to absorption.

(%/cm), Fig. 2は $\exp g_0 L$ (L :有効長)を縦軸としている。XeClではB準位とX準位の振動準位に対応したピーク ($v'=0 \rightarrow v''=0, 1, 2, 3$)がある。KrFにみられるくぼみは吸収によるもので、ほぼ均一なスペクトル広がりをもつ。

Fig. 3, 4に放電励起および電子ビーム励起エキシマレーザーの励起強度に対する小信号利得を示す^{7,8)}。放電励起レーザーでは、XeCl, KrF, ArFの順に単位電気入力あたりの利得は高い。したがって大口径で長パルス動作(励起強度は減少する)させた時はXeClがすぐれた特性を示すが、小口径で短パルス動作させるとKrFやArFでも十分な利得が得られるため、飽和エネルギー ($h\nu/\sigma$) が大きいことからむしろ KrFやArFが優れている。電子ビーム励起ではKrF

Fig. 3 Gain vs discharge power density in discharge excimer lasers.

で10%/CM/MW程度の利得が得られる。XeClやArFでは各種イオンによる吸収のため、必ずしも良好な増幅特性を示さない。

吸収 α は励起強度や希釈ガスに大きく依存するが、例えば放電励起XeCl希釈ガスNe)では

Fig. 4 Gain vs electron beam density in an electron beam pumped excimer laser.

$g_0/\alpha=50$ 程度でピコ秒増幅の障害とならない⁵⁾。電子ビーム励起では普通 $g_0/\alpha=10$ と吸収に比較で大きい⁶⁾、後述するように取出しエネルギーはむしろASEによって制限を受けるため問題は少ない。

3. エキシマレーザの波長での超短パルスの発生

現在までに①エキシマレーザから直接ピコ秒を得る方法⁹⁾、②エキシマレーザ励起色素レ

Fig. 5 Distributed feedback dye laser and XeCl amplifier.

レーザー¹⁾が後方ブリュアン散乱によって短パルスを得る方法¹⁰⁾, ③ArやYAGレーザーで励起したCPM色素レーザー²⁾, もしくはシンクポンプ色素レーザーなどの方法が試みられている^{5,11)}。このうち②③ではfsパルスが得られている。②では帰環型色素レーザー (DFDL) でXeCl⁺で220 fs¹⁾, KrFではパルス圧縮を併用することにより81 fs³⁾ のパルス幅が得られている。Fig. 5 にシステム図を示す¹⁾。DFDLを励起するパルスは、短共振器とCavity Quenchingによって得られ、その段階で既に8 psである。この方法の特徴はXeClで励起するため、500 nm 以下の短波長域まで数百fsが可能であることと、エキシマレーザー増幅器との同期が容易なことである。マックスプランク研究所ではXeClでローダミン, KrFではクマリン系の色素を用いることにより、両波長で超短パルスを得ている。KrFではパルスの発生と増幅過程で生じたチャージングをプリズムペアーで補償することにより370 fsのパルスを81 fsに圧縮している³⁾。その他長パルスXeClレーザーで励起した色素レーザーで5 ps程度¹²⁾, 狭帯域XeClレーザーをエチレングリコールに照射しその後方ブリュアン散乱で20ps

程度のパルス幅が得られている¹⁰⁾。

③は可視域の超短パルスを波長変換する方法で最も標準的である。XeClの倍波長は616 nmで超短パルスの発生にとって最適の波長に近く, CPMレーザーもシンクポンプレーザーも使用可能である。IBMではCPMレーザーの倍波長をXeClで増幅することにより、ほぼフーリエ変換限界の160 fsで12 mJの出力を得ている²⁾。励起光と波長制限から、これらの方法では500 nm以下の超短パルスは得られない。したがってKrFとArFでは3倍波や光混合を用いる。Fig. 6 に3倍波を用いたKrFにおける短パルスの発生法を示す¹³⁾。色素レーザーにはオキサジンを用いている。パルス圧縮後のパルス幅は745 nmで150 fsであるが、2段のKrFで増幅した後のパルス幅は365 fsであった。ArFの波長では580 nm (R6G) のピコ秒パルスをSrピートパイプオープンで3倍して光源としている¹⁴⁾。代表的なピコ秒, サブピコ秒エキシマレーザーをTable IIにまとめる。

4. パルス幅の計測

エキシマレーザーの波長ではもはやSHG相

Table II Typical ps and sub ps excimer lasers.

Laser	Short pulse sources	Pulse width	Output energy	Laboratories	References
XeCl	Synchronously pumped dye laser	2ps	40mJ	NRC Canada	5
XeCl	Distributed feedback dye laser	220fs	5mJ	Max-Planck	1
XeCl	CPM ring dye laser	160fs	12mJ	IBM	2
XeCl	Dye laser synchronously pumped by a pulse compressed YAG laser	310fs	300 mJ	ISSP Univ. Tokyo	
KrF	Synchronously pumped YAG laser dye laser + pulse compression	350fs	20mJ	Univ. Illinois	13
KrF	Distributed feed back dye laser	81fs	66mJ	Max-Planck	3
KrF	Short cavity, cavity-quenched dye laser	20ps	350mJ	ISSP Univ. Tokyo	19
ArF	Synchronously pumped dye laser	4ps	40mJ	Univ. Illinois	14

Fig.6 Sub ps pulse generation in KrF by the third harmonics of the synchronously pumped dye laser.

関法は用いられない。また一般のシステムはCW色素レーザー→色素増幅段 (<100 Hz)→SHG (THG)→エキシマ増幅器 (<100 Hz) のシーケンスで動作し、そのつど安定度は劣化する。UV域でのパルス幅の計測は多光子イオン化過程 (TPI)^{15, 18)}, 2光子蛍光 (TPF)¹⁷⁾, 例外的に基本波と3倍波の相互相関によって行なわれている¹³⁾。2光子イオン化法では1光子共鳴準位がなく、2光子でイオン化コンティニュームに達すれば良いので多くの媒質を選ぶことができる (Table III)。またUV光一般に適用できる。ただイオン電流をシグナルとするため、単一パルス計測はできない。これに対し2光子蛍光法は単一パルスに対しても適用可能であるが、U

Table III Media used for the pulsewidth measurement at UV wavelengths.

Lasers	Multi-photon ionization	Two photon fluorescence
YAG4 ω	NO ¹⁵⁾ Xe(Three photon ¹⁵⁾)	
XeCl	Triethylamine ¹⁶⁾ DABCO ²⁾	
KrF	Triethylamine NO	Xe ₂ (173nm) ¹⁷⁾
ArF		

V域では偶然の2光子共鳴準位を選ぶ必要から、選択は限られる。

単一パルス TPF 法以外の場合、パルス対パルスのバラツキを補償するため、一方の気体セルは参照用 (A) に他方をマイケルソン干渉計の信号用 (B) に用い、B/A で自己相関トレースを取ると格段に S/N が改善される¹⁾。

5. 増幅特性とスケールング

上準位寿命 (~数 ns) より十分に短いパルスを増幅する場合、増幅特性は次式で表わせる¹⁸⁾。

$$E_{\text{out}} = E_s \ln \{ \exp(g_0 L) [\exp(E_s) - 1] + 1 \} \quad (1)$$

ここで E_{in} , E_{out} は入力, 出力フルエンス, E_s は飽和エネルギー, L は有効長である。飽和エネルギー E_s は下準位の寿命がパルス幅に比べ短い場合、スペクトルがガウス分布しているとして、

$$E_s = h\nu / \sigma, \quad \sigma = \frac{1}{4\pi} \left(\frac{\ln 2}{\pi} \right)^{1/2} \frac{\lambda^4}{\tau c \Delta \lambda} \quad (2)$$

ここで $h\nu$ は光子エネルギー, σ は誘導放出断面積, λ は波長, $\Delta \lambda$ はスペクトル幅である。

(1) 式は均一広がり範囲で成立するので、XeCl のように振動準位によってスペクトルが分かれている場合、入力パルスのスペクトル幅 (パルス幅) によってみかけの E_s は変化する。パルス幅 350 fs (スペクトル幅 10 Å) の時 $E_s = 2.1 \text{ mJ/cm}^2$ ¹¹⁾, 2 ps で単一バンド (1 Å) を増幅した時 $E_s = 1 \text{ mJ/cm}^2$ であった⁵⁾。これに対し KrF ではスペクトルが均一広がりと考えられ、スペクトル幅によらず 2 mJ/cm^2 である。Fig. 7 にパルス幅 20 ps, スペクトル幅 1 Å に対する増幅特性を示す¹⁹⁾。(1) 式より取り出せる最大エネルギーは $E_{\text{max}} = E_s g_0 L$ であるが実際には吸収と ASE によって制限される。

吸収がある時は $E_{\text{max}} = \{ (g_0/\alpha) - 1 \} E_s$ で²⁰⁾。電子ビームのように $g_0/\alpha = 10$ の時 $E_{\text{max}} = 20 \text{ mJ/cm}^2$, 放電の場合 $g_0/\alpha = 20$ で $E_{\text{max}} = 40 \text{ mJ/cm}^2$ となる。実際にはむしろ ASE が E_{max} を制限する。

ASE を扱う場合、等価ノイズ入力を考える。

Fig. 7 Amplification characteristics of KrF.

単位波長当りの等価ノイズ入力⁵⁾

$$N = \pi n^2 \Omega c h \nu / 2 \lambda^2 \quad (3)$$

ここで n はレーザー媒質の屈折率, Ω は増幅器の一端から他端を見込む立体角で $(D/L)^2$ (D : 口径)。このノイズ入力⁵⁾が他端で飽和強度 $I_s = h\nu / \sigma \tau$ (τ : 上準位寿命) に達する条件を ASE による $g_0 L$ の制限とすると,

$$g_0 L \leq \ln (I_s / N) \quad (4)$$

$L=80\text{cm}$, $D=7\text{cm}$ の増幅器では KrF で $g_0 L=9.6$, XeCl で $g_0 L=8.8$ が限度となる。この場所の $E_{\max}$ は各々 $19\text{mJ}/\text{cm}^2$, $18\text{mJ}/\text{cm}^2$ となる。実際の装置では ASE をピコ秒出力の 5% 以下に

おさえると $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ が標準である。したがって 1 ビームで 1J を得ようとする増幅器の断面は 100cm^2 となる。利得の回復時間がエキシマでは数 ns であるから、数 ns 毎に入力すれば ASE も低減でき出力エネルギーもビーム数だけ増加する。いわゆるビーム多重化⁴⁾は大口径では経済的にも空間的にも大規模となり、サブピコ秒ではターゲットの同時照射が難しくなる。

増幅で問題となるのはパルス幅 (スペクトル幅) の増大である。レーザー媒質と空中の伝播はあまり問題とならないが、レーザー窓 (普通石英か CaF_2) やレンズ (石英) での自己位相変調 (SPM) と分散が問題となる。マックスプランク研究所では $13\text{GW}/\text{cm}^2$ (370 fs) の入力を 1.5cm の石英に通すことにより 500 fs のパルス幅を観測している³⁾。彼等はプリズムペアで正チャープを補償して 81 fs のパルス幅を得た。XeCl については $20\text{GW}/\text{cm}^2$ に入力レベルで SPM の効果は報告されていない^{1,2)}。

紫外域での透過光学系の分散は大きいので、SPM を無視しても多段増幅系ではパルス幅の増加は無視できない。50% のパルス幅の増加をもたらすスペクトル幅を $\delta\nu_L$ とすると²⁾,

$$L \left(\frac{dn}{d\nu} \right) \delta\nu_L = 0.5 \Delta t c,$$

ここで $(dn/d\nu)$ は屈折率の分散, Δt はパルス

Fig. 8 System diagram of terawatt class excimer lasers.

Fig.9 Total energy absorbed in the laser produced multiply charged ions. The shaded region represents the additional ions produced with 0.5ps 248nm laser, and the unshaded are data 5 ps 193nm laser.

幅。フーリエ限界のガウス形パルスの関係 $\Delta\nu = 0.64/c\Delta t$ と $\Delta\nu$ が $\delta\nu_L$ より小さい必要から、線型分散によって制限されるパルス幅は

$$\Delta t \geq \{1.28(dn/d\nu)L\}^{1/2}/c^2.$$

10cmの石英ではパルス幅は220 fsに制限される。

Fig. 8 に数TW~10TWを目標に物性研で開発中のシステムを示す。最終段の口径は最大500cm²で5 J 程度の出力が期待できる。パルス幅が0.5psであればピーク外力は10 TWに達する。

6. 短パルスエキシマレーザーの応用

これまでの議論からわかるとおり、エキシマレーザーはUV域で最短100 fs以下のパルス幅が得られ、10 TW級へのスチールアップが可能である。これらの特徴を生かす応用は多光子過程である。Fig. 9 に示す通り多光子イオン化過程で100光子以上の多価イオンが生成している²³⁾。多光子励起されな高励起状態からのXUV遷移の研究が進められており、XUVレーザーへの新しいアプローチとなろう。

TWのレーザー光を3 μmに集光すると10¹⁹ w/cm²の強度が得られる。これは原子内電場 (e/a_0^2 , e : 電荷, a_0 : ボーア半径) を1 ケタ越え

る電場に相当する。この状態では内殻励起や電子加速等の現象が観測されよう²⁴⁾。

非線形光学では既にKrFの17次 (14.3nm) が得られている⁴⁾。またTW級レーザーでは自己位相変調によりXUV域でコンティニウムが期待でき、SOR光のような使い方ができる。UV域では既にXeClによるH₂の反ストークス光のまわりで、コンティニウムが観測されている²⁵⁾。

エキシマレーザーでは更に超短パルス化し、高出力化する努力とともに、特徴を生かした新しい応用が拓けるものと期待される。

参考文献

- 1) B. Dick, S. Szatmari, B. Racz and F. P. Schäfer, Opt. Commun: **62** (1987) 277.
- 2) J. H. Glowina, J. Misewick, and P. P. Sorokin: J. Opt. Soc. Am. **B4** (1987) 1061.
- 3) S. Szatmari, F. P. Schäfer, E. M. Horsche, W. Mückenheim: Opt. Commun. **63** (1987) 305.
- 4) A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, V. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes: J. Opt. Soc. Am. **B4** (1987) 595.
- 5) P. B. Corkum and R. S. Taylor: IEEE J. Quantum. Electron. **QE-18** (1982) 1962.
- 6) H. Jara, K. Boyer, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, A. McPherson and C. K. Rhodes: Appl. Phys. **B42** (1987) 11.
- 7) S. Watanabe, M. Watanabe A. Endoh: Rev. Sci. Instr. **57** (1986) 2970.
- 8) C. B. Edwards et al: Appl. Phys. Lett., **38** (1981) 843.
- 9) M. Watanabe, S. Watanabe, A. Endoh: Opt. Lett., **8** (1983) 638.
- 10) Y. S. Huo, A. J. Alcock, and O. L. Bourne, Appl. Phys. **B38** (1985) 123.
- 11) J. H. Glowina, G. Arjavaligam, P. P. Sorokin, and J. E. Rothenberg Opt. Lett., **11** (1986) 79.
- 12) M. Watanabe, S. Watanabe, and A. Endoh: Appl. Phys. Lett., **45** (1984) 929.
- 13) A. P. Schwarzenbach, T. S. Luk, I. A. McIntyre, U. Johann, A. McPherson, K. Boyer, and C. K. Rhodes: Opt. Lett., **11** (1986) 499.
- 14) H. Egger, T. S. Luk, K. Boyer, D. F. Muller, H. Pummer, T. Srinivasan, and C. K. Rhodes: Appl. Phys. Lett., **41** (1982) 1032.
- 15) N. Morita and T. Yajima, Appl. Phys. **B28** (1982) 25.
- 16) S. Szatmari and F. P. Schäfer: Opt. Commun. **48** (1983) 279.
- 17) M. H. Hutchinson, I. A. McIntyre, G. N. Gibson, and C. K. Rhodes: Opt. Lett., **12** (1987) 102.
- 18) L. M. Frantz and S. Nodvik: J. Appl. Phys. **34** (1963) 2346.

- 19) A. Endoh, M. Watanabe, and S. Watanabe: to be published in Opt. Lett., **12** (1987) 906.
- 20) P. V. Avizonis and R. L. Grotbeck: J. Appl. Phys. **37** (1966) 687.
- 21) J. J. Ewing, R. A. Haas, J. C. Swingle, E. V. George and W. F. Krupke: IEEE J. Quantum. Electron. **15** (1979) 368.
- 22) M. J. Shaw, C. J. Hooker, I. N. Ross and J. P. Partanen: Annual Report of Rutherford Appleton Laboratory.
- 23) T. S. Luk, U. Johann, H. Jara, I. A. McIntyre, A. McPherson, A. P. Schwarzenbach, K. Boyer, and C. K. Rhodes: SPIE vol. 664, "High Intensity Laser Process" (1986) 223.
- 24) C. K. Rhodes: Science **229** (1985) 1345.
- 25) J. H. Glowina, J. Misewich, and P. P. Sorokin: J. Opt. Soc. Am. **B3** (1986) 1573.