レーザーオリジナル

電子ビーム励起KrF*レーザーの電子脱励起速度の測定

西岡 一*・佐々木 明**・倉嶋利雄*・倉西英明*
植田憲一*・宅間 宏*・糟谷紘一**

(1988年5月6日 受理)

Measurement of the Electron Quenching Rate
in an Electron Beam Pumped KrF* Laser

Hajime NISHIOKA*, Akira SASAKI**, Toshio KURASHIMA*
Hideaki KURANISHI*, Kenichi UEDA*, Hiroshi TAKUMA*
and Koichi KASUYA**

(Received May 6, 1988)

The electron quenching rate of KrF* in an electron beam pumped laser has been studied by accurately measuring the saturation intensity in a mixture of Ar/Kr/F₂=94/6/0.284. The input intensity of the measurements was widely varied from 100 W cm⁻² (small signal region) to 100 MW cm⁻² (absorption dominant region) in order to separate laser parameters which are small signal gain coefficient, absorption coefficient, and saturation intensity from the measured net gain coefficients. The gas pressure and the pump rate were varied in the range of 0.5 to 2.5 atm and 0.3 to 1.4 MW cm⁻³, respectively. The electron quenching rate constant of 4.5×10^{-7} cm³s⁻¹ was obtained from the pressure and the pump rate dependence of the KrF* saturation intensity with the temperature dependence of the rate gas 3-body quenching rate as a function of gas temperature to the -3rd power. The small signal gain coefficients calculated with the determined quenching rate constants shows excellent agreement with the measurements.

Key Words: KrF laser, Electron quenching, Gain measurement, Electron beam.

1. はじめに

KrFレーザーは、紫外域で発振するエキシマレーザーの中で、最も高出力が期待できる¹⁾レーザーである。エキシマレーザーは、レーザー媒質の冷却が容易である気体レーザーの長所を

合わせ持ち、繰り返し動作の容易な放電励起エキシマレーザーは半導体加工用レーザーなどとして、実用的な応用を目指す分野でも、活発に研究開発が行われている。気体レーザーのもう一つの長所は、大型化の容易な事である。KrFレーザーは、電子ビーム励起を用いる事によっ

*電気通信大学新形レーザー研究センター (〒182 調布市調布ヶ丘1-5-1)

**東京工業大学大学院総合理工学研究科エネルギー科学専攻 (〒227 横浜市緑区長津田2459)

*Institute for Laser Science, The University of Electro-Communications (1-5-1 Chofugaoka, Chofushi, 182)

**Tokyo Institute of Technology, Department of Energy Science, The Graduate School at Nagatsuta (4259 Nagatsuta, Midoriku, Yokohama, Kanagawa 227)

て数100kJ オーダーの増幅器を構成できる可能性^{1,2)}を持っており、慣性核融合 (Inertial Confinement Fusion; ICF) のドライバーとしてレーザー装置、ASE (Amplified Spontaneous Emission)^{3,4)}、内部反応機構の研究が行なわれている。これら、大型のKrFレーザーの最適動作条件を論じるためには、正確な反応定数の測定^{5,6)}、吸収断面積の測定⁷⁾に加え、実際にレーザー増幅器の動作特性を調べ、シミュレーションコード⁸⁾のモデルや反応定数を検証する必要がある。中でも、反応定数が直接測定困難な場合や、レーザー動作条件と大きく異なる条件において測定された反応速度定数のレーザー動作条件における妥当性を論じるためには、レーザー増幅特性の把握は欠くことができない。特に、励起強度や圧力、Kr濃度等^{9,10)}に関する増幅特性の振舞は、大型レーザーの設計や反応機構の理解に多くの情報を与えると言えよう。また、KrFレーザーの内部反応機構は複雑であり、電子密度やガス温度が反応過程に大きく影響する。特に、KrF*の脱励起は電子¹¹⁾や希ガスの3体衝突による割合が大きく、3体脱励起速度はガス温度に影響^{12,13,14)}される。従って、脱励起過程の正確な見積りには、電子密度やガス温度を一樣に保った測定空間が必要であるが、その実現は一般に容易でない。ところが、大型装置を用いた増幅実験^{10,15,16)}では、大型レーザー増幅器は大きな測定空間(レーザー媒質)を均一に励起できる上に、プローブレーザー光が測定空間を限定しているので、励起分布や境界条件の影響を全く排除した理想的な測定対象を実現できる。これは、レーザー動作条件における反応速度を測定する上で大きな利点となりうる。

本論文では、入力光強度を非常に広い範囲($100\text{ W cm}^{-2} \sim 100\text{ MW cm}^{-2}$)に渡って変化させ、小信号利得係数 g_0 、吸収係数 α 、飽和光強度 I_s を決定し、レーザー出力のレーザーパラメーター依存性に基づいて、KrF*レーザーの脱励起過程について考察する。また、励起強度、圧力の変化に対し脱励起反応を詳細に調べ、レーザー動作条件における実効的な電子脱励起速度を

決定した結果について報告する。

2. 高入力光強度利得測定

レーザー増幅特性を一般化し、表現するためには小信号利得 g_0 、飽和光強度 I_s をパラメーターとする表式が広く用いられている。しかしながら、エキシマレーザーは他の多くのレーザーと異なり、発振波長にレーザー媒質自身の吸収を持っている。このため、増幅特性の記述のためにはもう1つのパラメーターとして非飽和吸収係数 α が必要である。増幅特性をこれら3つのパラメーターを使って記述する自由度は、2パラメーターの場合よりも遥かに多く、Rigrod²⁹⁾解析によるエキシマレーザーの正確なパラメーター決定が難しい原因となっている。パラメーターの正確な分離には、個々のパラメーターをそのパラメーターの影響が一番大きな領域で決定するのが有効な手段である。例えば、入力光強度を非常に高くし、利得を強く飽和させると、利得係数は吸収係数に比べ大変小さくなり、1パス利得から直接吸収係数を精度よく決定できる。一方、入力光強度を非常に小さくすれば、小信号利得と吸収係数の差 $g_0 - \alpha$ を決定できる。この増幅実験では、このような境界条件を明確にしたパラメーター決定を行うために、入力光強度を 100 W cm^{-2} から利得飽和光強度の50倍に相当する 100 MW cm^{-2} まで 10^6 倍変化させ測定を行った。この広範囲な増幅特性を記述できるレーザーパラメーターは1組であり、パラメーターの正確な分離が可能である。

3. 実験装置

測定に用いた増幅器は、500J級KrFレーザーシステム²⁾の初段増幅器に用いている横方向電子ビーム励起KrFレーザー増幅器であり、80J/パルスのエネルギーを120nsで出力できる。電子ビームダイオードは、パルス幅120ns、蓄積エネルギー1.67kJの水誘電体平行平板ブルームラインによりレールギャップを通じて駆動される。このブルームラインのスイッチには、SF₆を満たしたレーザートリガギャップ (LTSG)

Fig.1 Experimental setup for the wide-range gain measurements. The diffraction limited output of the master oscillator is magnified 5 in diameter and is amplified by the 3-pass electron beam pumped preamplifier. PD are photo-diode monitors for the input and output intensity. The input intensity is varied with a liquid UV filter (IMP).

が用いられ、KrFレーザーの照射によって他の電子ビーム装置や測定機器と1ns以下のジッターで同期させ得る。電子ビームカソードは、長さ70cm、幅4cmの大きさで、ステンレスのチーズグレータータイプである。アノード及び圧力膜には、低電圧・大電流密度ダイオード用に開発したCCK膜(Carbon Coated Kapton)膜¹⁷⁾を用いた。この電子ビームダイオードの典型的な電圧・電流は270kV、27kAである。

増幅実験に用いる事のできる入力光強度の上限は、レーザー増幅器の入力窓に用いる合成石英のレーザー損傷閾値で制限される。この制限内で可能な限り高い入力光強度を得るために、レーザー上準位に対し定常状態が仮定できる範囲で、入力光パルス幅を短くする事を考え、発振器としてパルス幅5nsの放電型レーザー(MSNW社EXCI-LITE XL-410)を用いた。この放電型レーザーには、不安定共振器を取付け、そのビーム広がり角を回折限界まで抑えてある。Fig.1のように、このレーザー光を×5のテレスコープにより広げ、電子ビーム励起増幅器により3パス増幅する事により、必要なレーザーエネルギーを得た。2パス、3パスは、増幅器内部で空間的に重なる様に配置し、利得の飽和効果によってレーザーパルスが長く尾を引くこ

Damage threshold of fused silica
for 12ns KrF laser

damage free	< 200MW/cm ²
multiple shot	400MW/cm ²
single shot	600MW/cm ²

Fig.2 Typical waveform of the master oscillator and the preamplifier output. Damage free operation is verified below 200 MWcm⁻².

とを防いだ。また、レーザービーム伝播路をパイプにより囲い、実験室内部の空気の流れがレーザービームを擾乱しないようにした。Fig.2は、Tektronix-7104オシロスコープ、HAMAMATSU R1193U-02フォトダイオードにより観測した3パス増幅器出力波形と増幅前の放電型レーザー波形である。飽和増幅によってパルスの立ち上がりや尾が大きくなり、増幅後のレーザーパルスの半値全幅は12nsになった。このプローブビームによって合成石英のレーザー損傷閾値を測定した所、200MWcm⁻²までは、多数回照射を行っても、何等損傷を生ずる事なく使用可能であった。この入力光強度は、典型的な利得飽和光強度¹⁰⁾の100倍に相当し、利得を完全飽和させるためには十分な光強度である。入力光強度の調節は、縮小光学系の低光強度側に置いたIMP(Inosic Mono Phosphate)フィルターにより光を減衰させることによって行った。IMP水溶液は、KrFレーザーの発振波長249nmに吸収の極大値を持ち、KrFレーザー光の減衰に格好の液体フィルターである。測定したこのフィルターの透過率は、100Wcm⁻²から10MWcm⁻²まで完全に一定であり、且つ、10³回のレーザー照射を行っても劣化は認められなかった。

励起長は、高励起強度 ($>0.9\text{MWcm}^{-3}$) では ASE (Amplified Spontaneous Emission) の影響によって利得飽和を生じないように40cmに制限し、低励起強度では、測定感度を上げるために70cmで行った。レーザー窓は、表面反射による寄生発振を避けるために光軸に対し5度傾けて取付けた。入力レーザーは、被測定増幅器の励起開始から一定の時刻 (75ns) に入射するようにLTSGを用いてタイミングを定めた。出力光エネルギーは、SCIENTEK MODEL 38-0103カロリメーターによって測定し、入出力フォトダイオードの校正に用いた。レーザーガスは、 F_2 分圧、 Kr 分圧を各々0.284%、6%に固定して測定した。

増幅実験の精度は、入出力光強度の測定精度のみでなく、被測定空間へのデポジションエネルギー測定精度に大きく依存する。励起密度の決定は、電子ビームによるレーザーセル全体へのエネルギー注入量をプレッシャージャンプ法によって測定し、励起空間分布を連続エネルギー損失モデルを用いたモンテカルロ法コード³⁰⁾によって行った。この計算機コードは、アノード及び圧力膜の散乱効果やレーザーガスとレーザーセル間等の境界条件を考慮している。また、カソード面上の電流分布をセグメントチャージコレクターにより測定し、計算機コードの入射電流密度分布を与えた。Fig.3に、圧力レーザーガス圧力1.76atmの場合の励起強度分布を示す。増幅特性の励起強度依存性は、この励起強度の空間分布を用いて、プローブレザーの光軸の圧力膜からの距離を変え、励起強度を0.3~ 1.4MWcm^{-3} まで変化させて行った。また、圧力依存性の測定は、プローブレザーの光軸を圧力膜から1.5cmの距離に保ったまま、レーザーガス圧力を0.5atm~2.5atmまで変化させて測定を行った。このときの励起強度は、1.76atmにおいて 1.4MWcm^{-3} であり、0.5atmから2.5atmまでの範囲では、レーザーガス圧力に比例していた。

Fig.3 Calculated spatial distribution of pump rates in the transversely pumped amplifies by an electron beam. The lower trace indicates the pump rate on the central line of the upper 2 dimensional distribution.

Fig.4 Typical net gain (log of single pass gain and divided by active length) and extracted energy as a function of input intensity. In the strongly saturated region around 100MWcm^{-2} , "non-saturable absorption" dominate the single pass gain of the amplifier.

4. 測定結果

4.1 励起強度依存性

初めに、レーザーガス圧力を一定値1.76atmに保ったまま、励起強度を $0.3\text{MWcm}^{-3} \sim 1.2\text{MWcm}^{-3}$ の範囲で変化させて測定を行った。Fig. 4に、一例として、圧力1.76atm、励起強度 1.4MWcm^{-2} の入力光強度に対するネットゲイン g_{net} と引き出しパワー I_{ex} の変化を示す。ここで、 g_{net} , I_{ex} は

$$g_{\text{net}} = 1/L \cdot \log_e (I_o/I_{\text{in}}) \quad (1)$$

$$I_{\text{ex}} = I_o - I_{\text{in}} \quad (2)$$

である。ここで、 I_{in} , I_o はプローブ光の入出力光強度、 L はレーザー増幅器の励起長である。 g_{net} は、入力光強度の増加に従って減少し、約 20MWcm^{-2} 以上では、飽和利得係数は吸収係数よりも小さくなり、 g_{net} は負の値を示した。更に、入力光強度を 100MWcm^{-2} 付近まで増加させると、利得は完全に飽和して g_{net} は一定の「非飽和吸収係数」を示した。Fig. 5は、各励起強度に対する g_{net} の変化を示す。励起強度が増加するに従い、小信号ネットゲイン、零利得点、吸収係数は増加している。ここで、レーザー上準位に対し定常状態を仮定し、 g_{net} を次式のようににおいて最小二乗解析を行い、 g_{net} からレーザーパラメーター g_o , αI_s を決定した。

$$I_o/I_{\text{in}} = \int_0^L \exp (g_{\text{net}} \cdot dz)$$

Fig. 5 Net gain curves for various values for the pump rate.

Fig. 6 Laser parameters as a function of the pump rate. Saturation intensity I_s increases with the pump rate due to the growth of the electron quenching rate. The dash dotted line indicates small signal gain coefficients without the growth of quenching rate.

$$g_{\text{net}} = \frac{g_o}{1 + I/I_s} - \alpha \quad (3)$$

ここで、 g_o , α , I_s は小信号利得係数、非飽和吸収係数、飽和光強度である。また、 α には完全非飽和を仮定しているが、後の圧力依存性の項で述べるように、この圧力では吸収の飽和光強度は非常に高く、飽和効果を見捨てるためである。このようにして得た g_o , α , I_s の励起強度依存性をFig. 6に示す。 g_o は、励起強度と共に増加し、強励起側で飽和する傾向が見られた。図中の一点鎖線は、原点を通る直線を表しており、利得が励起強度に対して飽和している様子がよく分かる。 α も励起強度と共に増加している。また、上準位脱励起速度を反映している I_s は、ガス圧力が一定であるにもかかわらず、励起強度とともに増加している。これは、電子密度の変化による電子脱励起速度の変化であると考えられる。脱励起過程については、後に詳しく述べる。

4.2 圧力依存性

Fig. 7 Net gain curves under various pressures.

Ar/Kr/F₂ = 94/6/0.284

Fig. 8 Magnified detail around zero gain points. A broken line for 0.5atm represents the net gain curve including absorption saturation. The dashed line indicates net-gain curve without absorption saturation.

レーザーガス圧力を0.5～2.5atmまで変化させて測定を行った。Fig. 7に、圧力をパラメーターとして入力光強度に対するネットゲイン係数 g_{net} の振舞を示す。入力光強度の上昇と共に利得は飽和し、入力光強度数 10 MW cm^{-2} 以上では、利得は吸収係数より小さくなり、増幅器は負の利得を示した。また、小信号利得、零利得点光強度、吸収係数は、圧力と共に増加を示した。Fig. 8は、零利得点付近の拡大図である。圧力0.5atmでは、 g_{net} は入力光強度の増加に従

って減少し一旦極小値を示すが、さらに光強度を表すと再び増加する様子を示した。 g_{net} の増加は吸収係数の飽和と考える事ができる。これまでKrFレーザーの吸収は、KrF*が希ガスの3体衝突により生成するKr₂F*を除き、「非飽和吸収」とされていた。しかし、利得の飽和光強度に比べ十分高いこの光強度における吸収飽和は、KrF*とほぼ等しい飽和強度を持つKr₂F*以外の吸収が飽和した事を示している。Fig. 8における破線は、吸収飽和を考慮しない場合の g_{net} の計算値を示しており、0.5atmでは吸収飽和を考慮しなければ大きな食い違いを生じる。従って、吸収飽和を考慮して g_{net} を表現する事を試みた。即ち、

$$g_{net} = \frac{g_0}{1 + I/I_s} - \frac{\alpha_s}{1 + I/I_{sa}} - \alpha_n \quad (4)$$

ここで、 g_0 は小信号利得係数、 I_s ；利得の飽和光強度、 α_s ；可飽和吸収係数、 I_{sa} ；吸収飽和光強度、 α_n ；非飽和吸収係数である。F₂, Kr₂F*を除くKrFレーザーの吸収媒質の実効寿命は、この実験の入力パルス幅よりも十分短く、定常解析が可能である。従って、その吸収断面積と脱励起速度によって決まる光強度において吸収飽和を示すと考え、F₂吸収を α_n と置き、他の吸収媒質による吸収係数を α_s と置いた。また、非励起時のF₂の吸収係数を 100 MW cm^{-2} まで測定し、この入力光強度範囲でF₂吸収は非飽和である事を確認した。この g_{net} を増幅器の長さLに渡って積分し、測定値に対し最小二乗解析を行って得たレーザーパラメーターをFig. 9に示す。飽和光強度 I_s は、希ガスやF₂との衝突による脱励起速度の増加を反映して、圧力と共に増加している。利得係数 g_0 は、低圧では圧力に比例して増加するが、1atm以上では脱励起速度の増加により飽和する傾向を示した。

α_s と I_{sa} の圧力依存性をFig. 10に示す。 α_s は利得と同様に圧力と共に増加し、飽和する振舞を示した。また、 I_{sa} は、0.5atmにおいても 60 MW cm^{-2} であり、圧力に非常に強く依存して増加している。KrFレーザーの最大引き出し効率を与える入力光強度 I_{opt} は、次式により与えら

Fig. 9 Laser parameters as a function of gas pressure.

Fig. 10 Absorption coefficient and its saturation intensity. The absorption coefficient by F_2 is subtracted.

れる。

$$I_{\text{opt}} \sim I_s (\sqrt{\gamma} - 1) \quad \gamma = g_0 / \alpha \quad (5)$$

$\gamma = 10$ を仮定すれば I_{opt} は I_s の 2 から 3 倍程度であるので、吸収飽和光強度は実際のレーザー動作条件における光強度よりも非常に高い事が分かる。従って、このような吸収飽和は、KrF レーザーの引き出し効率に影響を及ぼす事はない。また、これまでの発振実験や最大効率点付近までの増幅実験では、吸収飽和を観測することは

困難である。

4.3 脱励起過程

KrF レーザー媒質に高速の電子ビームが入射すると、レーザーガスを電離し、大量の 2 次電子が発生する。この 2 次電子は、レーザー上準位を脱励起する。レーザーガス圧力が一定の場合には、電子密度は励起強度に比例して増加するので、高励起強度 (1 MW cm^{-3}) では、電子脱励起はレーザー動作に重要な影響を与える。一方、希ガスによる 3 体脱励起速度は、圧力の 2 乗に比例して増加し、3 体脱励起速度が、大気圧以上の圧力におけるレーザー動作に及ぼす影響は非常に大きい。ここでは、励起強度依存性、圧力依存性によって得られた飽和光強度の振舞から、電子脱励起速度定数、希ガス 3 体脱励起速度定数について考察する。

レーザー光強度 I におけるレーザー上準位の速度方程式は、次式のように書ける。

$$\frac{d[\text{KrF}^*]}{dt} = R_p - \left(\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} + \frac{\sigma I}{h\nu} \right) \cdot [\text{KrF}^*] \quad (6)$$

ここで、 $[\text{KrF}^*]$ は KrF* の数密度、 R_p は、上準位の励起速度、 σ 、 $h\nu$ は、KrF* の誘導放出断面積及び光子エネルギー (5 eV) である。また、 τ_{eff} は、KrF* の実効寿命である。KrF* の放射寿命は理論的に 6.5 ns¹⁸⁾ と推定されており、更にレーザー動作条件では、衝突により 2 ns 程度に短いと考えられる。従って、通常の場合定常状態を仮定する事ができ、式(6)を零と置くことができる。定常状態において、入力レーザー光強度 I が、飽和光強度 I_s に等しいとき、光子による脱励起速度は、他の脱励起速度 $1/\tau_{\text{eff}}$ に等しい。即ち、

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_{\text{eff}}} &= \frac{\sigma I_s}{h\nu} \\ &= k_1 [e_s] + k_2 [F_2] \\ &\quad + \Sigma k_3 [R_g] + \Sigma k_4 [R_g]^2 + \frac{1}{\tau_\gamma} \end{aligned} \quad (7)$$

ここで、 e_s 、 R_g 、 τ_γ は、2 次電子、希ガス原子自然放出寿命、表し、 $[\]$ はその数密度を示す。また、 k_1 、 k_2 、 k_3 、 k_4 は、電子、 F_2 、希ガス 2

体，希ガス 3 体衝突による脱励起反応速度定数である。式(7)より，飽和光強度 I_s の振舞は，誘導放出断面積を比例定数として，レーザー上準位の脱励起速度を直接反映している事が分かる。

ここで，電子脱励起速度定数を決定するために，電子密度 $[e_s]$ を以下のようにして求めた。KrF レーザーガス中では，2 次電子は，高速の電子ビームによる希ガスの電離により発生する。この電子ビームによる 2 次電子生成速度 S は，励起強度を R_d ，希ガスの平均エネルギーを W ，電子の電荷量を e_0 として，

$$S = \frac{R_d}{e_0 W} \quad (8)$$

と表す事ができる³¹⁾。一方，正イオンと電子の再結合速度に比べ， F_2 の電子付着速度が非常に大きいために，レーザーガス中における 2 次電子の消失は， F_2 濃度によって決定される。従って， e_s の速度方程式は k_s を F_2 の解離性電子付着反応定数として

$$\frac{d[e_s]}{dt} = S - k_s [F_2] [e_s] \quad (8)$$

と書ける。 F_2 濃度 0.284% 1.76 atm のレーザーガス中では，2 次電子の実効寿命は 1 ns と非常に短いので式(9)に定常状態を仮定して電子密度を求めると，

$$[e_s] = \frac{S}{k_s \cdot [F_2]} \quad (10)$$

と決定できる。式(10)より，ガス圧力 (F_2 密度) を一定に保った状態では，電子密度は，励起強度に比例する事が分かる。一方， F_2 濃度を一定に保ち，レーザーガス圧力を変化させた場合には，電子生成速度が比例するために電子密度は一定に保たれる。

Table I は，各脱励起過程の原理的に期待される励起強度依存性，圧力依存性である。励起強度により変化する電子脱励起は，圧力変化では一定に保たれ，圧力により変化する F_2 や希ガスとの衝突による脱励起は，励起強度に対し一定である事が分かる。従って，励起強度，圧力の 2 つの変化から，2 次元的な解析を行うことにより個々の脱励起過程を分離した解析が可能

Table I. Pump rate and pressure dependence of the quenching process. The reduction of the F_2 number density is calculated to correct "burn-up".

	Pump Rate R	Pressure P
Radiative	const.	const.
Electron	$\propto R$	const.
F_2	const.	$\propto P$
Rg 2body	const.	$\propto P$
Rg 3body	T_g^{-3}	$\propto P^2$

Fig. 11 The quenching rate as a function of pump rate. (a), Radiative; (b), rare gas 2-body and F_2 ; (c), rare gas 3-body, and (d), electron quenching rate.

になる。Fig. 11, 12 は，飽和光強度の励起強度，圧力依存性から求めた，脱励起過程の詳細である。上述のように，励起強度の変化に対しては，電子脱励起速度の変化が大きく影響し，他の脱励起の変化は小さい。一方，圧力変化に対しては，衝突反応，特に希ガスの 3 体脱励起反応速度の変化が大きく，電子脱励起の影響は現れない。従って，Fig. 11 の I_s の傾き，Fig. 12 のガス圧力零の外挿値より電子脱励起速度が求ま

Table II. Rate constant and the cross section of KrF^* -stimulated emission.

Reaction		Rate constant	Reference
$\text{F}_2 + e_s$ (slow)	$\rightarrow \text{F}^- + \text{F}$	$7.5 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	19
$\text{KrF}^* + h\nu$	$\rightarrow \text{Kr} + \text{F} + 2h\nu$	$2.4 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$	18
$\text{KrF}^* + \text{F}_2$	$\rightarrow \text{Kr} + 3\text{F}$	$6.0 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	20, 21
$\text{KrF}^* + \text{Ar}$	$\rightarrow \text{Ar} + \text{Kr} + \text{F}$	$1.8 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	22
$\text{KrF}^* + \text{Kr}$	$\rightarrow 2\text{Kr} + \text{F}$	$2.0 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	21
$\text{KrF}^* + 2\text{Ar}$	$\rightarrow \text{ArKrF}^* + \text{Ar}$	$8.0 \times 10^{-32} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	23
$\text{KrF}^* + \text{Ar} + \text{Kr}$	$\rightarrow \text{ArKrF}^* + \text{Kr}$	$8.0 \times 10^{-32} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	24
$\text{KrF}^* + \text{Ar} + \text{Kr}$	$\rightarrow \text{Kr}_2\text{F}^* + \text{Ar}$	$4.0 \times 10^{-31} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	24
$\text{KrF}^* + 2\text{Kr}$	$\rightarrow \text{Kr}_2\text{F}^* + \text{Kr}$	$6.8 \times 10^{-31} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	25, 26
$\text{KrF}^* + e_s$	$\rightarrow \text{Kr} + \text{F} + e_s$	$4.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	this work

Fig.12 The quenching rate as a function of gas pressure. (a), Radiative; (b), electron; (c), rare gas 2-body and F_2 , (d), rare gas 3-body quenching rate.

り, Fig.11の励起強度零の外挿値, Fig.12の傾きよりガスとの衝突による脱励起速度を求める事ができる。このとき, 3体脱励起速度はガス温度に対し -3 乗の依存性²⁴⁾を持つことを考慮した。また, 2次電子付着やHarpoon反応による F_2 の減少量を計算により求め, 測定時刻における F_2 の数密度を決定した。Table IIに計算に使用した, F_2 , 希ガス2体, 希ガス3体脱励起速度定数, F_2 の解離性付着断面積, KrF^* の誘導放出断面積を示す。これまでに測定された3体衝突脱励起速度定数の値^{25~27)}は, 1桁近い広がりを持っているので, 解析は, F_2 , 希ガス2体の脱励起速度定数を固定しを希ガス3

Fig.13 Calculated small signal gain coefficient as a function of gas pressure. (a), The electron quenching rate constant $k_{ele} = 4.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ and 3-body rate constants in Table 2 with gas temperature to the -3 rd power (Tg^{-3}) dependence in 3-body rare gas collisional quenching; (b), $k_{ele} = 2.0 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$. (c), $k_{ele} = 4.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ and gas temperature to the -0.5 power ($\text{Tg}^{-0.5}$) dependence in 3-body rare gas quenching. Open circles indicate the measurements.

体, 電子脱励起速度定数をパラメーターとして行った。解析の結果, Table IIに示した3体脱励起速度定数を用いた場合に, 飽和光強度の励起強度依存性, 圧力依存性が矛盾なく説明され電子脱励起速度定数 $4.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ が求まった。この値は, これまで用いられていた測定値²⁸⁾の2.3倍に相当する。電子密度決定に用いたF₂の電子付着定数には電子温度依存性があるが, 今回の測定はレーザー動作条件におけるKrF*の実効的な電子脱励起量を正確に決定したことに他ならない。KrF*全脱励起量に対する電子脱励起量の割合は, 低圧力において非常に大きな割合を占め, 圧力0.5atmでは50%に相当する。

Table IIに示した反応速度定数を用いて, 小信号利得の圧力依存性を計算した結果を Fig. 13に示す。測定値と計算値は非常によく一致し, 反応速度定数が正確に決定できている事が分かる。同様に, 励起強度に対する小信号利得の振

舞 (Fig. 14) も測定値に極めてよく一致した。比較のために, これまで用いられて来た電子脱励起速度定数を用いると, Fig. 13の一点鎖線が示す様に低圧力における小信号利得の傾きが大きく異なる。また, 報告されている3体衝突脱励起速度の温度依存性には大きな開きがある。3体脱励起速度の温度依存性をガス温度に対し $0.5 \text{ 乗}^{14)}$ に取った場合には, Fig. 13, 14の点線が示すように高圧力, 高励起強度側で小信号利得の低下が見られた。これらの結果から, 3体脱励起速度に -3 乗 の温度依存性を用いたのは妥当であった。

5. まとめ

高光強度における増幅実験を行い, 励起強度, レーザーガス圧力に対するレーザーパラメーターの振舞を観測した。 10^6 に及び入力光強度を変化させることによって, レーザーパラメーターを分離して正確に決定することができた。測定したレーザーパラメーターを用いて, KrF*の脱励起速度の温度依存性や圧力依存性について考察し, 実効的な電子脱励起速度を決定した。求められた電子脱励起速度定数は, $4.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ であり, 従来値の2.3倍であった。電子脱励起過程は, 高励起条件 ($> 1 \text{ MW cm}^{-3}$) では全脱励起反応の約30%を占め, KrF*の主要な脱励起反応であることが分かった。求めた脱励起反応速度定数は, 励起強度やガス圧力に対する小信号利得の振舞を正確に説明した。

参 考 文 献

- 1) A.M. Hunter et al.: IEEE QE-22 (1986) 386.
- 2) 植田: レーザー研究 6 (1987) 342.
- 3) D.D. Lowenthal and J.M. Eggleston: IEEE QE-22 (1986) 1165.
- 4) A. Sasaki, K. Ueda, H. Takuma, T. Kasuya: Proc. International symposium on short wa-velength lasers and their applications Nov. 11-13 (1987) ILE Osaka (to be published).
- 5) 植田, 金田, 北川, 宅間: レーザー研究 11 (1983) 576.
- 6) 植田, 金田, 佐々木, 宅間: レーザー研究 12

Fig. 14 Calculated small signal gain as a function of the pump rate. Gas-temperature dependence of the quenching rate constant in 3-body rare gas quenching. (a), T_g^{-3} ; (b), $T_g^{-0.5}$.

- (1984) 357.
- 7) K. Hakuta et al.: J. Appl. Phys. **61** (1987) 2113.
- 8) F. Kannari, M. Obara and T. Fujioka: J. Appl. Phys. **57** (1985) 4309.
- 9) A. Suda, M. Obara and A. Noguchi: Fusion Technology **11** (1987) 548.
- 10) K. Ueda, H. Nishioka and H. Takuma: Proc. SPIE **710** (1986) 7.
- 11) P.J.M. Peters et al.: Appl. Phys. **B43** (1987) 253.
- 12) V.H. Shui: Appl. Phys. Lett. **34** (1979) 203.
- 13) A. Mandl, D. Klimek and J.H. Parks: J. Appl. Phys. **55** (1984) 3940.
- 14) W.D. Kimura and E.T. Salesky: Appl. Phys. Lett. **48** (1986) 897.
- 15) J.K. Rice et al.: IEEE **QE-16** (1980) 1315.
- 16) E.T. Salesky and W.D. Kimura: Appl. Phys. Lett. **46** (1985) 927.
- 17) K. Ueda, H. Nishioka and H. Takuma: Proc. BEAMS' 86 June 9-12 (1986) 663.
- 18) T.H. Dunning et al.: Appl. Phys. Lett. **28** (1976) 649.
- 19) C.B. Edwards and F.O. Neil: Laser and Particle Beams **1 part 1** (1983) 8. 1.
- 20) J.E. Velazco et al.: J. Chem. Phys. **65** (1976) 3468.
- 21) M. Rokni et al.: Phys. Rev. **A16** (1977) 2216.
- 22) J.G. Eder et al.: Appl. Phys. Lett. **32** (1978) 733.
- 23) J.A. Mangano et al.: Appl. Phys. Lett. **31** (1977) 26.
- 24) V.H. Shui et al.: Appl. Phys. Lett. **36** (1980) 135.
- 25) G.P. Quigley et al.: Appl. Phys. Lett. **32** (1978) 627.
- 26) J.G. Eder et al.: Appl. Phys. Lett. **32** (1978) 733.
- 27) W.L. Morgan et al.: Phys. Rev. **A23** (1981) 1256.
- 28) D.W. Trainor and J.H. Jacob: Appl. Phys. Lett. **37** (1980) 675.
- 29) W.W. Rigrod: J. Appl. Lett. **36** (1965) 2487.
- 30) R. Shimizu et al.: Japan. J. Appl. Phys **9** (1970) 1291.
- 31) R.A. Lowry and G.H. Miller: Phys. Rev. **109** (1958) 826.