レーザーオリジナル

真空紫外アルゴンエキシマレーザー共振器反射鏡の
特性と損傷機構瀧川 靖雄*・黒澤 宏**・奥田 昌宏**・佐々木 亘***
吉田 國雄†・藤原 閱夫†・加藤 義章†

(1990年 7 月13日 受理)

Damage Mechanisms and Characteristics of the Cavity Reflectors
for Vacuum Ultraviolet Argon Excimer LasersYasuo TAKIGAWA*, Kou KUROSAWA**, Masahiro OKUDA**, Wataru SASAKI***,
Kunio YOSHIDA†, Etsuo FUJIWARA† and Yoshiaki KATO†

(Received July 13, 1990)

For high-power outputs from rare-gas excimer lasers, cavity reflectors having high reflectivity and free from radiation damage are primarily required. We measure reflectivities and surface topographic features for some reflectors made of Al films deposited on SiO₂ substrates, SiC films deposited on graphite substrates, SiO₂ glasses, and single crystals of W, Mo, Si and Cr. The results of surface damage observed on Al and Si mirrors as well as a thermodynamical calculation show that the surface damage is caused mainly by surfacemelting due to strong absorption of laser energy.

Key Words: Mirror damage, Argon excimer laser, Vacuum ultraviolet spectral region.

1. 序 論

現在レーザー工学の分野における高出力短波長レーザーの開発は、X線レーザー実現への一つのアプローチとして活発な研究が行われてお

り、その成果が注目されている。希ガスエキシマレーザーは真空紫外域で可変波長発振が可能なレーザーで、安定な高出力発振が得られれば応用面からも非常に有用である。中でもアルゴンエキシマレーザーは共振器モードで発振する

*大阪電気通信大学工学部電子物性工学科 (〒572 寝屋川市初町18-8)

**大阪府立大学工学部電子工学科 (〒591 堺市百舌鳥梅町4丁804)

***宮崎大学工学部電気工学科 (〒889-21 宮崎市学園木花台西1-1)

†大阪大学レーザー核融合研究センター (〒565 吹田市山田丘2-6)

*Department of Solid State Electronics, Osaka Electro-Communication University (18-8 Hatsu-cho, Neyagawa, Osaka 572)

**Department of Electronics, University of Osaka Prefecture (804 4-cho Mozu Umemachi, Sakai, Osaka 591)

***Department of Electrical Engineering, Miyazaki University (1-1 Gakuen Kibanadai-nishi, Miyazaki, Miyazaki 889-21)

†Institute of Laser Engineering, Osaka University (2-6 Yamada-oka, Suita, Osaka 565)

レーザーとしては現在最も短波長の126 nmで発振するが、その高出力化には多くの技術的困難があった。我々は数年来、アルゴンエキシマレーザーの高出力化と短波長化を行ってきた¹⁻³⁾。その研究の過程で共振器鏡の光損傷が、発振出力の限界を決めている重要な要素の一つになっていることが明らかになった。したがって真空紫外域で光損傷耐力の高い良質の共振器鏡の開発を行う必要があった。真空紫外域の高光損傷耐力反射鏡の開発は、希ガスエキシマレーザーだけでなく、X線レーザーおよび高輝度シンクロトン放射光に対しても重要である。

光損傷耐力の高い共振器鏡の開発には、レーザーの発振波長における損傷機構を知る必要がある。一般に固体のレーザー損傷の主な機構には(1)熱的損傷過程⁴⁾、(2)誘電体破壊過程(電子雪崩)^{5,6)}がある。実際には、照射レーザー光のエネルギー、パルス幅、波長、さらに反射鏡の種類と表面の研磨状態などにより、上記の機構が複合的に生じるが、吸収係数が 10 cm^{-1} より大きい場合は熱的損傷が支配的である。

アルゴンエキシマレーザーの場合は波長が126 nmと極めて短く、この波長では、ほとんどの物質の吸収係数が 10^3 cm^{-1} 以上と非常に大きい⁷⁾。しかし、一方では光子のエネルギーが9.8 eVと高いため、石英などの絶縁体においてさえ、価電子帯から伝導帯への電子励起が一光子の吸収で行なわれ得るので、熱的損傷と並行して、光化学効果が現われる可能性もある¹¹⁾。

従来、真空紫外域での光損傷については、強力な照射光源が入手困難であったため、筆者らの知る限りでは、ほとんど実験の報告が無い。いままでに、 SiO_2 ガラス基板にAlを真空蒸着した(Al/SiO_2)のAl薄膜鏡¹⁾、Si単結晶⁸⁾、 SiO_2 ガラス⁸⁾、Mo単結晶⁹⁾、およびSiC膜¹⁰⁾反射鏡を用いて発振実験を行い、レーザーの発振特性については、既に報告した。

本論文では、これらの反射鏡に加えて、W単結晶およびCr単結晶反射鏡について、鏡の特性と損傷耐力を測定し、Al薄膜、Si単結晶、

Fig.1 Schematic view of the experimental apparatus.

Fig.2 Waveform of the diode voltage (a) and the output waveform (b) of an Ar excimer laser.

SiO_2 ガラスおよびW単結晶の各反射鏡の光損傷を詳しく観察した。これらの結果を基に鏡面の粗さ、真空紫外での反射率および素材の物理定数などを考慮して、この波長域のレーザー共振器鏡の損傷機構について議論するとともに、真空紫外域の高光損傷耐力反射鏡の製作に対する一つの指針を与える。

Table I Optical property of various materials at 126nm.

Mirror material	Optical	constants	Reflectivity		Measured roughness	Reflectivity degradation	
	n	k	calculated R_C [%]	measured R_O [%]	σ_{rms} [nm]	$1 - (R_O/R_C)$	I_S/I_O
Al	0.046	1.23	92.9	----	----	----	----
Si	0.32	1.44	66.9	52	0.6	22	6
SiC	1.26	2.15	48.3	47	0.2	3	2
TiO ₂	0.53	1.19	43.5	----	----	----	----
Diamond	3.41	1.18	34.5	----	----	----	----
ZnS	1.04	1.38	31.3	----	----	----	----
W	1.09	1.37	30.1	19	1.2	37	11
InP	0.83	1.18	30.1	----	----	----	----
Si ₃ N ₄	2.05	1.47	28.6	----	----	----	----
Mo	0.74	1.05	28.4	27	0.3	5	3
SiO ₂	2.26	0.19	15.3	14	1.3	9	12
Cr	----	----	----	22	4.8	----	38
Al/SiO ₂	0.046	1.23	92.9	80	----	14	----

2. 希ガスエキシマレーザー

アルゴンエキシマレーザーの発振には高いガス圧の励起が要求されるので、高速電子ビームによる励起が一般に用いられる。電子ビーム励起エキシマレーザー装置については既に詳しく報告しているので¹⁻³⁾、ここでは、簡単に説明する。Fig. 1 に示すようにレーザーヘッド部は同軸形ダイオードと高圧共振器室で構成されている。ステンレススチール製アノードパイプ(神戸製鋼所)の外径は5 mm、肉厚80 μ mで、40 cmの長さの円筒状のカソードの中央に配置されている。Fig.2(a)に示す電圧パルスで加速された高速電子ビームは薄いアノードパイプの壁を貫通して内部のレーザーガスを励起する。

アノードパイプの両端にある高圧共振器室に反射鏡とMgF₂単結晶板(厚さ5 mm)の出力鏡を配置し光共振器を構成する。共振器長は90 cmである。レーザー光は出力鏡右方の圧力隔壁窓(MgF₂単結晶板、厚さ5 mm)を通して真空排気した観測室に導びかれる。

レーザー出力はジュールメーター(Gen Tec, ED-200)で測定する。ジュールメーターは3 μ m

から193 nmの波長範囲で較正されている。その感度は3 μ mから300 nmの波長範囲では一定で、それ以下の短波長側では単調に低下している。実験波長付近での特性が不明なので、平坦特性を示す可視光波長域の感度特性値を使用して測定した。用いたMgF₂板の126 nmの波長に対する実測透過率は63%、反射率は8%であった。したがって、測定された出力値は共振器内エネルギーフローの約40%になる。また直径0.3 mmのステンレス線をビームスプリッターとして使用し、バイプラナ光電管(浜松フォトニクス, R132U-04)でレーザー出力波形をモニタした。Fig.2(b)に、その一例として、W単結晶反射鏡を用いた場合のレーザー波形を示す。高出力発振の場合、反射鏡の種類によるレーザー波形の変化は顕著でなく、半値幅は5~10 nsであった。

3. 反射鏡の特性

3.1 鏡材料の選択

アルゴンエキシマレーザー共振器反射鏡の反射鏡材料を選択するため、種々の物質の光学定数(n, k)⁷⁾から、式(1)を用いて反射率(R_C)を

計算した。その結果を反射率の高い順にTable I に示す。

$$R_c = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2} \quad (1)$$

この表を見るとAlの反射率が最も高く92.9%である。次いで、Siが66.9%の高い反射率を示す。この波長域において60%以上の高反射率を示す物質はAlとSiの二つだけである。Al薄膜鏡はアルゴンエキシマレーザーの開発初期段階で用いられ、初めて2 MW出力を達成した¹⁾反射鏡である。

次いで反射率の高い物質として、SiCがある。TiO₂は代表的な高屈折率物質であり、プリズムなどに広く用いられている。30%前後の反射率を示す物質としては、ダイヤモンド(C), ZnS, W, InP, Si₃N₄, およびMoがある。

レーザー共振器鏡としては反射率が高いことが望ましい。しかしながら、アルゴンエキシマレーザーでは15 cm⁻¹の高利得が得られるので、高い反射率を持つ物質よりも、むしろ入手できることが重要と考え、SiC膜、Si単結晶、Mo単結晶、W単結晶、Cr単結晶、SiO₂ガラス、およびAl薄膜鏡を選んだ。真空紫外域の波長に対する反射率をシンクロトロン放射光(分子科学研究所, UVSOR)によって60 nmから300 nmまでの波長範囲で測定した。測定は入射角10度で行った。Si単結晶、W単結晶、およびCr単結晶反射鏡についての測定結果の一例を、Fig. 3 ~ 5 に示す。Si単結晶とW単結晶反射鏡については、光学定数の文献値⁷⁾から式(1)を用いて計算した結果をFig. 3 とFig. 4 に点線で示した。Si単結晶鏡の実測反射率(R_o)は200 nmから短波長に向かって急激に低下し、計算値(点線)と大きな相違を示す。W単結晶鏡も200 nm付近から短波長側で計算値(点線)より実測の反射率が小さくなっている。Cr単結晶鏡の反射率は200 nmから短波長側に向かって急激に低下し100 nm付近では20%にまで低下する。

Cr単結晶鏡に関しては真空紫外から可視域におよぶ広い波長範囲での反射率の測定は初め

Fig. 3 Reflectivity of a Si single crystal mirror. The dashed curve represents the reflectivities calculated from the optical constants given in Ref. 7.

Fig. 4 Reflectivity of a W single crystal mirror. The dashed curve represents the reflectivities calculated from the optical constants given in Ref. 7.

Fig. 5 Reflectivity of a Cr single crystal mirror.

てのもので、今回の測定の意義は大きいと思われる。Mo単結晶⁹⁾、SiC膜¹⁰⁾およびSiO₂ガラス反射鏡¹¹⁾の反射率についてはすでに報告しており、ここでは測定結果の詳細は示さないが、

全波長域で計算値ときわめて良い一致を示していることを指摘しておく。

3.2 表面粗さと反射率低下

レーザー共振器鏡としては、反射率とともに平面度および表面粗さが共振器の損失を決める重要な要素となる。そこで、レーザー共振器鏡として使用する前に、試作した6種類の反射鏡の平面度と表面粗さを測定した。平面度はレーザー干渉計($\lambda=632.8\text{ nm}$)で測定し、それぞれの反射鏡について、 $\lambda/10$ 程度の平面度が得られた。この値は126 nmの波長に換算すると $\lambda/2$ の平面度になり、必ずしも良好なものではない。しかしながら本実験の目的である損傷閾値に対しては、表面粗さより大きく影響しないものと考えて、これ以上に平面度を良くすることは試みなかった。

表面粗さ計(WYKO社製, NCP-1000M)の分解能は0.1 nmである。試作した反射鏡の表面粗さの測定結果をTable Iに示す。SiC膜とMo単結晶反射鏡の表面粗さが他に比べて特に良好であり、それぞれ0.2 nm_{rms}および0.3 nm_{rms}の実効値が得られた。両者は非常に高品質の結晶が得られたので通常の光学研磨を行った後にスーパーポリッシュと呼ばれる特別の研磨方法を用いて^{9,10)}、特に平滑な面を得た。これ以外の鏡については通常の光学研磨を行った。Cr単結晶反射鏡は研磨面のスクラッチ傷が取り除けなかったため表面粗さは4.8 nm_{rms}と他に比較して最も悪い。W単結晶反射鏡も研磨による鋭い傷が残っていた。ここに示す測定結果は傷の無い部分の評価である。

真空紫外域では表面粗さによる散乱が大きな損失を与えるので、表面粗さの測定結果を用いて散乱損失を計算した。散乱損失がない場合の垂直入射光の反射強度を I_0 とし、散乱による損失を考慮した場合の反射光強度を I_s とすると、反射率の低下率は式(2)によって計算できる¹²⁾。

$$I_s/I_0 = 1 - \exp\left(-\frac{4\pi\sigma_{\text{rms}}}{\lambda}\right) \quad (2)$$

この計算結果を百分率で表わし、Table Iに示す。

また先に述べた反射率の計算値 R_c と実測値 R_o から $1-(R_o/R_c)$ を計算し、使用した反射鏡の反射率が物質本来の反射率に対して低下している割合を求めた。スーパーポリッシュしたSiC膜とMo単結晶反射鏡の表面粗さは2~3%と極めて小さく、ほとんど散乱損失を無視できる。さらに反射率の計算値からこの散乱損失を引いた値が反射率の実測値とよく一致した。これらの反射鏡はそれぞれの材料の特性を忠実に表していると思える。これに対してスクラッチ傷を持つCr単結晶反射鏡は反射率が38%も低下している。通常の光学研磨によって得られたSi単結晶、W単結晶およびSiO₂ガラス反射鏡は10%程度の散乱損失を示す。ここで10%以下の反射率の低下率を表面粗さの許容範囲と規定すると、126 nmの波長に対しては、 $\sigma_{\text{rms}}/\lambda=8.4 \times 10^{-3}$ のときであるから、表面粗さは1 nm_{rms}以下に研磨仕上げをしなければならない。

ここでW単結晶、Si単結晶およびSiO₂ガラス反射鏡については表面粗さによる散乱損失を考慮しても反射率の計算値と実測値に大きな差が認められた。このことについては後で議論する。

4. 反射鏡の表面損傷

4.1 損傷耐力

上記の反射鏡の光損傷耐力を調べるために、アルゴンエキシマレーザーの共振器鏡としてMgF₂単結晶出力鏡と組み合わせて用い、損傷が生じたときのレーザー出力を測定した。実験はガス圧力を変えてレーザー発振出力を次第に強くしていくことを繰り返し、レーザー発振終了の都度、共振器から鏡を取り出して目視によって損傷の有無を観察した。このようにして、損傷を確認したときのレーザー共振器内エネルギーフローを、その反射鏡の損傷閾値として $F_{th}\text{ J/cm}^2$ で表し、Table IIに示した。レーザー出力を2枚のMgF₂単結晶板の透過率で除した値を共振器内エネルギーフローとした。この値は測定されたレーザー出力の約2.5倍である。

Table II Critical fluence for surface damage of various mirrors together with thermodynamical data.

Mirror material	Calculated reflectivity R_c [%]	Heat conductivity κ [J/cm $\cdot$ deg $\cdot$ sec]	Specific heat c [J/g $\cdot$ k]	Density ρ [g/cm 3]	Melting temperature T_m [k]	Diffusion length D_L [μ m]	Penetration depth D_S [nm]	Critical fluence F_C [J/cm 2]	Observed damage threshold F_{th} [J/cm 2]
Al	92.9	2.37	0.904	2.702	933	1.4	8.15	3.0	---
Si	66.9	1.49	0.720	2.33	1683	1.3	6.96	1.0	0.47
SiC	48.3	0.90	0.670	3.2	2973	0.92	4.66	1.0	1.0*
Diamond	34.5	6.60	0.519	3.51	3823	2.7	8.53	2.7	---
W	30.1	1.73	0.132	19.24	3683	1.2	7.31	1.4	0.083
Mo	28.4	1.38	0.255	10.28	2883	1.03	9.55	0.95	0.64*
SiO $_2$	15.3	0.014	0.742	2.2	1993	0.13	52.0	0.04	0.0625
Cr	22**	0.91	0.46	7.19	2130	0.76	---	0.59	0.28*
Al/SiO $_2$	92.9	0.014	0.742	2.2	933	0.13	8.15	0.19	0.229

* fluence without surface damage

** measured value

損傷の生じなかった反射鏡については、本実験で得られた最大出力を示した。

SiC膜, Mo単結晶, およびCr単結晶反射鏡には各々の共振器構成で得られる最高出力においても損傷が観測されなかった。SiC膜反射鏡は、実測反射率が47%と高いこともあって、1 J/cm 2 でも損傷が観測されず、今回の反射鏡の中では最高の出力を示した。次いで27%の反射率を持つMo単結晶反射鏡が0.64 J/cm 2 の高い出力を示した。最後に22%の反射率を持つCr単結晶反射鏡が0.28 J/cm 2 の出力を示した。一方、W単結晶, SiO $_2$ ガラス, Si単結晶, 及びAl薄膜 (Al/SiO $_2$) 反射鏡はTable II に示す共振器内エネルギーフローで顕著な損傷が認められた。

4.2 表面損傷部分の観察

損傷を起したSi単結晶, W単結晶, SiO $_2$ ガラスおよびAl薄膜反射鏡の表面には未損傷部分と明確に区別できるビームパターンが観測できた。これらを光学顕微鏡で観察し、物質の違いによる損傷の状態を調べた。その結果の代表例として、Si単結晶およびAl薄膜反射鏡の光学顕微鏡写真をFig. 6 とFig. 7 に示す。SiO $_2$ ガラス反射鏡についてはすでに報告している¹¹⁾のでここでは再度写真を示すことはしない。

Si単結晶反射鏡の損傷には、白く変色した広い部分があり、ビーム中心付近 (Fig. 6 のスケ

Fig. 6 Optical microscope photograph of the damaged part of a Si mirror.

Fig. 7 Optical microscope photograph of the damaged part of an Al film mirror.

ルを境にして右の部分)では直径が約110 μm の、明らかに溶融したと思われる痕跡が認められる。さらにその周辺の広い範囲にわたって溶融して出来たと思われる小さな円形のくぼみが多数ある。このくぼみは、おそらく研磨時に生じた局所的な結晶不整が融点低下を起こして選択的に溶融して発生したものと考えられる。Fig. 7は石英基板上に真空蒸着したAl薄膜反射鏡の照射ビーム中心付近の表面損傷状態である。白く見えるのがAlであり、Alが溶融飛散して固化した様子を示している。黒く見えるのはAlが蒸発して無くなって基板の石英が露出した部分である。明らかにAl膜が剥離した様子も見られる。W単結晶反射鏡の場合にもレーザー光が照射された領域では大きな研磨傷がなくなり平滑になって、一度溶融が生じたことを示していた。

以上の観察結果から、損傷部分では明らかに表面が溶融状態にあったことが分かる。したがって本実験における反射鏡の光損傷の機構は照射光エネルギー吸収による熱作用が支配的であることが明確になった。

5. 考 察

5.1 損傷耐力の見積り

本実験の鏡面が受ける共振器内エネルギーフローはたかだか1 J/cm²である。レーザー光のパルス幅は5~10 nsであるので、ピーク出力は10⁸ W/cm²程度になる。しかしこの程度のエネルギーフローでは誘電体破壊が生ずるほどには大きくないので熱的損傷が支配的であることは理解できる。

一方、アルゴンエキシマレーザー光の光子エネルギーは9.8 eVと大きいので、固体内に高い励起電子密度を形成することが出来る。したがって、光化学作用による損傷が熱作用による損傷とともに複合的に起こっていることは十分に考えられる。事実、SiO₂反射鏡の場合には光化学作用による現象が明らかに観測されている。これについては既に報告した¹¹⁾。

しかし、ここでは簡単のため熱作用による損

傷機構のみを考慮し実験結果の解釈と損傷閾値の見積りを行なう。共振器内エネルギーフローが反射鏡に吸収され、表面温度が上昇し溶融に至る損傷機構を考える。本実験のように、レーザー発振波長が短くなりその波長域で大きい吸収係数を持つ物質を反射鏡に使用した場合、光の侵入深さは非常に浅く、表面層のごく薄い部分で吸収エネルギー密度が大きくなる。そこで本実験に用いた種々の反射鏡がレーザー光を吸収し、その表面温度がそれぞれの材料の融点に達するのに必要な照射エネルギーを計算した。

レーザー光が反射鏡に照射される場合、光の強度が入射面における強度の1/eになる深さを光の侵入長(D_s)とすると、

$$D_s = \lambda / (4\pi k) \quad (3)$$

で表され、各物質に対する計算結果をTable IIに示す。 D_s はSiO₂ガラス反射鏡の場合以外は10 nm以下である。ここで k は複素屈折率の虚数部である。

一方、吸収された光が、熱エネルギーとして物質内を時間(τ)の間に拡散する熱拡散長(D_L)は

$$D_L = (2\kappa\tau/c\rho)^{1/2} \quad (4)$$

で表わされる。ここで κ は熱伝導率¹³⁾、 c は比熱¹⁴⁾、および ρ は密度¹⁵⁾である。この式より10 nsのパルス幅のレーザーが照射されている間に反射鏡内を熱が拡散する熱拡散長(D_L)を各々の物質について計算し、Table IIに示す。この熱拡散長と光の侵入長を比較するとSiO₂ガラス以外では、熱拡散長は光の侵入長の数十倍から数百倍と非常に大きい。したがって、本実験の反射鏡の温度上昇のモデルとして簡単に次のように考えた。

すなわち、照射されたレーザー光パルスの全エネルギーのうち $(1-R_0/100)$ の部分が反射鏡により吸収され、パルス幅に相当する10 nsの時間内に、熱拡散長の深さまで達する。したがって、10 nsの間に照射ビームの断面積(20 mm²)と熱拡散長の積で表わされる体積の温度

が均一に上昇すると仮定し、この温度をレーザーパルス照射による反射鏡の表面温度と考える。熱拡散長はレーザービームの直径に比べて十分小さいので、熱拡散は鏡面の垂直方向にのみ生じ、径方向への拡散は無視できる。反射鏡表面から気体中への発散も無視する。

以上のモデルで表面温度が融点(T_m)に達するのに必要なフルエンスは式(5)¹⁶⁾で計算できる。これを臨界フルエンス(F_c)とし、その反射鏡の損傷耐力と考える。

$$F_c = \frac{c \rho D_L (T_m - T_R)}{1 - R_c/100} \quad (5)$$

ここで、 T_R は室温である。今回用いた反射鏡について F_c を計算し、それをTable IIに示す。簡単のため、吸収エネルギーは全部熱に変換されると仮定し、熱現象以外の遷移過程によるエネルギー吸収などは無視した。

計算結果によると、臨界フルエンスの値の最も高いのはAlの 3.0 J/cm^2 である。Alがこのように高い損傷耐力値を示すのは反射率が高いことと熱伝導率が高いことが融点の低さを補っているからである。次はダイヤモンドの 2.7 J/cm^2 である。ダイヤモンドは融点が 3925 K で、熱伝導率も $6.6 \text{ J/cm} \cdot \text{deg} \cdot \text{sec}$ と、この表の中では最も大きな値を持つ物質である。この高い熱伝導率が、反射率が 34.5% とSiの 66.9% よりも低いにもかかわらず、大きな損傷耐力を持つ原因になっている。3番目に損傷耐力の高いのはWの 1.4 J/cm^2 である。次いでSiとSiCの 1.0 J/cm^2 とMoの 0.95 J/cm^2 であり、これに続いてCrの 0.59 J/cm^2 となっている。

これらの臨界フルエンスと、実際に共振器鏡として使用した場合の損傷が生ずる鏡面上のエネルギーフローと比較すると損傷が生じなかったSiC膜、Mo単結晶およびCr単結晶反射鏡のエネルギーフローはいずれも臨界フルエンス以下になっている。一方、SiC膜反射鏡の臨界フルエンスは実測値の 1.0 J/cm^2 と一致した。SiC膜反射鏡は表面粗さが問題にならない程度に鏡面研磨加工が出来ており、しかも実測の反射率が

理論的反射率から測定された表面粗さによる散乱損失を減じた値とよく一致する(Table I)。

このことから、SiC膜反射鏡はその材料の特性をそのまま示すものであり、表面酸化も無い安定な表面を維持していると云える。Mo単結晶反射鏡も同様にその素材の性質を良く表した安定な反射面の鏡が出来ていると云える。

損傷が生じたSiO₂ガラスとAl薄膜反射鏡はいずれも鏡面上のエネルギーフローが臨界フルエンスを越えている。SiO₂の熱伝導率は他と比較すると約2桁低いために、比較的高い融点を持ちながら、この反射鏡の臨界フルエンスはきわめて低い値 0.04 J/cm^2 になり、実際 0.06 J/cm^2 で顕著な損傷が生じた。一般にAl膜反射鏡はAlの酸化を防止するために、MgF₂被膜をコートしてある。それでも、この反射鏡の反射率は 126 nm で 80% と、理論値の 92.9% より低下している。購入後の反射率の経年変化は少ないことを確認しているので、反射率の低下は製作時の酸化等による表面変化によるものと思われる。いずれにしてもこの様な構成の反射鏡の F_c は基板の熱伝導によって決まる。Table IIの計算結果も低い F_c を与え、実験でも低い出力で蒸着膜が完全に蒸発しているような激しい損傷を受けた。

W単結晶およびSi単結晶反射鏡は鏡面エネルギーフローが、臨界フルエンス F_c に比べて、はるかに低いにもかかわらず明かな損傷が観測された。この理由は、これらの反射鏡の表面が変質していて、その素材の性質を反映していないからであると思われる。すなわちTable Iの反射率の実測値を見ても、これらの反射鏡にだけ、表面粗さによる反射率の低下に比べて大きな反射率の減少を示している。このことは明らかに光の侵入長に匹敵する厚さの酸化層が表面に発生していることを示している。Si単結晶反射鏡ではさらに研磨時に生じたと思われる局所的な弱い部分も存在する。

以上のように、吸収係数の大きい真空紫外域では反射鏡の光損傷耐力は、その物質の反射率、熱伝導率および融点の3つの定数の兼ね合いで

決まり, その臨界フルエンスは, 簡単なモデルより導出された式(5)で推定できることが示された。

6. 結 論

真空紫外アルゴンエキシマレーザーの高出力化を達成するためには高損傷耐力鏡の開発がきわめて重要である。そこで高損傷耐力鏡として備えるべき条件を明らかにするために, 126 nmの波長に対して高反射率を持つ種々の物質の中から高品位で入手可能な材料で共振器反射鏡を製作した。そして, それぞれの反射鏡にたいして実際に高出力発振テストを行い損傷閾値を調べた。その結果, この波長域で反射率が47%と27%を持つSiC膜反射鏡とMo単結晶反射鏡が高損傷耐力鏡であることを明らかにした。

さらに, 損傷面の様子を詳しく調べ共振器鏡の光損傷の支配的機構が表面溶融にあることを明確にし, 熱伝導率と反射率および融点を考慮した簡単なモデルで損傷が生じる臨界フルエンスが推定できることを明らかにした。

臨界フルエンスの計算結果から, 融点が低くても反射率と熱伝導率の大きい物質は高い臨界フルエンスを示すことが分かった。もし表面酸化層がなく滑らかな鏡面が得られるなら, Al鏡が100 nm以上の波長域において高損傷耐力の高反射率反射鏡になることを指摘した。Siのような熱伝導率の大きい基板上に, 光の侵入長程度の厚さのAl膜を超高真空中で蒸着したものなどが有望と思われる¹⁷⁾。

本論文の結果は, アルゴンエキシマレーザーだけでなく, 高出力短波長レーザーやX線レーザーおよび高輝度シンクロトロン放射光においても適用できる

謝 辞

本研究の推進に当たり, 大阪大学レーザー核融合研究センター長の中井貞夫教授の, 表面粗さ測定には同センターOTグループの吉田英次研究員と野田智靖研究員に, また反射率の測定には分子科学研究所極端紫外光施設の渡辺誠助教授とスタッフのご協力を頂いた。さらにSi単

結晶とCr単結晶反射鏡は東ソー株式会社から, W単結晶反射鏡は東京タングステン株式会社から, およびMo単結晶反射鏡は日本鉱業株式会社から提供して頂いた。ここに感謝を申し上げる。

参 考 文 献

- 1) Y.Uehara, W.Sasaki, S.Saito, E.Fujiwara, Y.Kato, M.Yamanaka, K.Tsuchida and J.Fujita: Opt. Lett. 9 (1984) 539.
- 2) W.Sasaki, Y.Uehara, K.Kurosawa, E.Fujiwara, Y.Kato and M.Yamanaka: Rev. Laser Engineer. 14 (1986) 370.
- 3) 佐々木, 黒沢: レーザー研究 16 (1988) 58.
- 4) S.I.Andreev, I.V.Versikovski and Yu.I.Dymishits: Sov. Phys. Tech. Phys. 15 (1971) 1109.
- 5) G.M.Zverev, T.N.Mihailova, V.A.Pashkor and N.M.Soloveva: Sov. Phys. JETP 26 (1968) 1053.
- 6) A.Wasserman: Appl. Phys. Lett. 10 (1967) 132.
- 7) E.D.Palik ed.: *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic, Orlando, 1985).
- 8) 武内, 黒沢, 佐々木, 瀧川, 吉田, 藤原, 加藤: レーザー研究 16 (1988) 58.
- 9) K.Yoshida, K.Takeuchi, Y.Kato, E.Fujiwara, K.Yamashita, K.Kurosawa, W.Sasaki and H.Okamoto: Appl. Phys. Lett. 52 (1988) 1111.
- 10) K. Kurosawa, W. Sasaki, M. Okuda, Y.Takigawa, K.Yoshida, E.Fujiwara and Y.Kato: Rev. Sci. Instrum. 61 (1990) 728.
- 11) Y.Takigawa, K.Kurosawa, W.Sasaki, K.Yoshida, E.Fujiwara and Y.Kato: J. Non-Cryst. Solids 116 (1990) 293.
- 12) B.Aschenbach, H.Brauninger, A.Ondrush and P.Predehl: SPIE Proc. 316 (1981) 187.
- 13) D.E.Gray ed.: *American Institute of Physics Handbook* (McGraw-Hill, New York, 1982).
- 14) O. Kubaschewski, E. LL. Evans and C. B. Alcock: *Metallurgical Thermochemistry* (Pergamon, New York, 1967).
- 15) R.C.Weast ed.: *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (CRC Press, Boca Raton, 1980).
- 16) J.M.Poate and J.W.Mayer: in *Laser Annealing of Semiconductors*, ed. by J.M.Poate and J.W.Mayer (Academic, New York, 1982) p.6.
- 17) 山田: 電気学会雑誌 109 (1990) 785.