放電励起エキシマレーザー発振過程の2次元シミュレーション

山越 英男, 桑田 知江*, 山下一郎*, 加藤 光雄, 牧原 洋*, 辰本 正弘*

三菱重工株式会社基盤技術研究所 (〒236 神奈川県横浜市金沢区幸浦 1-8-1)

*三菱重工株式会社広島研究所 (〒733 広島市西区観音新町 4-6-22)

Two-Dimensional Computer Simulation of Discharge Pumped Excimer Lasers

Hideo YAMAKOSHI, Chie KUWADA*, Ichiro YAMASHITA*, Mitsuo KATO

Hiroshi MAKIHARA*, and Masahiro TATSUMOTO*

Advanced Technology Research Center, Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.

1-8-1 Sachiura, Kanazawa-ku, Yokohama Kanagawa 236

*Hiroshima Research and Development Center, Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.

4-6-22 Kanon-Shinmachi, Nishi-ku, Hiroshima 733

(Received July 22, 1996)

A two-dimensional simulation code of a discharge-pumped excimer laser was developed to study the effect of spatial discharge non-uniformity on laser output performance. The code consists of a circuit equation, a continuity equation to calculate two-dimensional electric field, a steady-state Boltzmann equation, and rate equations. The preionization distribution was found to affect the electron and the excited particle distributions and hence the laser beam profile. Even with uniform-field electrodes, the calculated electric field distribution was not uniform, being effected by the configuration of surrounding structures, and varying in time with the changing discharge plasma conditions. The electric field surrounding insulating structures were found to increase prior to gas breakdown and to decrease afterwards.

Key Words: Excimer laser, Two-dimensional simulation, XeCl, Electric field, Preionization

1. はじめに

紫外域において高効率で発振する放電励起エキシマレーザーは、リソグラフィなどの超微細加工、アブレーションによる新材料創製など様々な分野に利用されている。これまで、大出力化などを目指した開発が行われる一方、発振特性予測を目的とした理論解析コードが開発されてきた。1978年にGreenら¹⁾によって最初のコードが作成され、国内では水波ら²⁾、外園ら³⁾により同種のコードが作成されている。この種のコードでは回路方程式、電子エネルギー分布を記述する定常ボルツマン方程式、各種粒子(原子、分子、イオン、電子)の反応と光共振器内の光子の増減を記述するレート方程式を並列に解くことにより、時々変化する放電電界、粒子ならびに光子の生成・消滅、およびレーザー出力が計算される。これらにより、回路構成、電源電圧、電極間距離やレーザー媒質ガスの組成、圧力のレーザー特性への影響が予測され、高効率化などへの指針が示されてきた。また、最近Sorkinaらは、スパイカーサステイナ回路を用いた弱励起のXeClレーザーを対象として、励起強度に対する出力特性を予測し、実験結果との良い一致を得ている⁴⁾。

しかしながら一般には、これらのコードで予測される

レーザー特性は、実際の実験結果と定性的には一致するが、レーザー出力が実際より大きく計算されるなど、定量性はそれほど良いとは言えない。この原因として、①放電が空間的に均一と仮定していること、②放電過程のモデル化が充分でないことなどが考えられる。②では、実測される電子エネルギー分布が従来のコードで予測される分布よりもマックスウェル分布に近いことが分かってきており、コードの改良が進められている^{3,5)}。著者らのグループもトムソン散乱法による電子エネルギー分布、電子密度の測定結果と解析結果の比較を行って、コードの改良を進めている⁶⁾。①については、電極形状、予備電離分布などによる空間的な放電状態の影響や、放電の不安定性(アーク放電の発生)による局所的な不均一性の影響を模擬できないことが問題となっており、空間分布を考慮した解析が必要とされている。

放電励起エキシマレーザーでは、均一で幅の広い放電により、良質なビームパターンで高効率な出力が得られることが多い。そこで、均一な電界を得られるErnst型電極などを用いたり、定常電界の2次元計算を行ったりしている^{7,8)}。しかし、放電により電界が変化するため、電極形状の放電への影響は定常解析では充分ではない。したがって、電極形状などを適正化するためには、放電分布を考慮したコー

ドが必要である。また、予備電離の適正化にも空間分布を考慮する必要がある。

このような解析としてKushnerらにより2つの2次元解析^{9,10)}が報告されている。1つは、2次元断面を適当に短冊状に切って電流路とし、それぞれの電界強度から放電状態を計算している⁹⁾。この方法は電流路をあらかじめ決めるので、正確な計算はできない。もう一つは、電子ビーム維持放電を対象として電流の連続性により電界を計算している¹⁰⁾。しかし、通常のエキシマレーザーでは放電初期には電流の連続性が成り立たず、放電初期に影響が大きい予備電離や放電部構造の検討には不十分と考えられる。

一方、明石らは放電進展を模擬する空間分布解析¹¹⁾を、Fangらは不安定共振器型でのレーザー光の増幅の空間解析¹²⁾を報告しているが、これらは1次元である。

本論文では、放電の空間分布のレーザー特性への影響を検討するために、エキシマレーザーの2次元コードを作成した。電界分布を求めるための伝導電流と変位電流の連続の式とその有限要素法による解法は、今回新たに採用したものである。

2. 理論解析モデル

今回のモデルは従来の空間均一のモデルを2次元化したもので、(i)電極間電圧を求める回路方程式、(ii)電界分布を計算する連続の式、(iii)電子衝突の反応定数を求める定常ボルツマン方程式、(iv)粒子間の化学反応、光子の増減を計算するレート方程式からなり、これらを連成してパルス発振を計算する。2次元空間はレーザー光軸(電極の長手方向)に垂直な断面とし、光軸方向は均一とした。計算の流れをFig.1に示す。

電界分布を計算する(ii)の連続の式は以下のように導出した。まず、体積放電であるので磁界は小さいとして無視するとマクスウェル方程式から以下の3式が得られる。

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = 0 \quad (2)$$

$$\nabla \cdot \left(\mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) = 0 \quad (3)$$

$\mathbf{D}$ は電束密度、 ρ は電荷密度、 $\mathbf{E}$ は電界強度、 $\mathbf{J}$ は伝導電流密度、 t は時間である。(3)はベクトル公式から得られ、括弧中の各項は伝導と変位電流を示す。(1)を代入すると、

$$\nabla \cdot \mathbf{J} + \frac{\partial}{\partial t} \rho = 0 \quad (4)$$

となって、電荷連続の式を得る。パルス放電の間イオンは動かないと仮定すれば、伝導電流密度 $\mathbf{J}$ は電子のみを考慮して次式で表される。

$$\mathbf{J} = \rho_e \mu_e \mathbf{E} \quad (5)$$

$\rho_e = -N_e e$ は電子による電荷密度、 N_e は電子密度、 e は素電荷、 μ_e は電子移動度である。そして、(2)式が成り立つようにポテンシャル ϕ を導入し、(3)式を変形すると、

$$\nabla \cdot (\rho_e \mu_e \nabla \phi + \epsilon \nabla \dot{\phi}) = 0 \quad (6)$$

が得られる。 ϵ は真空の誘電率である。(2)式が成り立つためには磁界が小さく無視できる必要がある。そこで、計算結果から磁界を計算し、無視できることを確認した。

放電解析ではKushnerらが行ったように¹⁰⁾、(6)式第1項の伝導電流の連続を解く場合が多いが、ここでは絶縁破壊前に大きく影響する変位電流を考慮するために、第2項も含めた(6)式を解いた。絶縁物の部分は伝導電流が無く、変位電流のみであるから、

$$\nabla \cdot (\epsilon_D \epsilon \nabla \dot{\phi}) = 0 \quad (7)$$

を解いた。 ϵ_D は絶縁物の誘電率である。解法はGalerkin法を適用した有限要素法で、三角形一次要素(以下、セル)を用い、非定常項は差分法(Crank-Nicolson法)で近似した。陰極上のシースは非常に薄く¹¹⁾、これを正確に解くためにはセルを非常に小さくしなければならない。しかし、シースでの電圧降下は全体と比較して小さいと考えられるので、シースは直接解かず大きなセルを用いた。セル分割の例をFig.2に示す。

陰極電子放出にはこのシースが影響する。また、もう一つの放出機構である光電子放出もモデル化が難しい。そこで、電子放出には近似モデルを採用することにした。両極端の場合として、(a)電子放出無、(b)電界に対応し自由に放出、の2モデルを計算した。出力、放電幅などは変化なかったが、出力分布では(b)は陽極から陰極まで均一であるのに対し(a)では陰極近傍に強度のばらつきがあった。対象とした実験でも(a)のような焼きパターンが観測されたので、(a)をモデルとして採用した。

計算は以下に行った(Fig.1)。まず、ある時刻の放電電流 I_d と放電電圧 V_d からオームの法則で放電抵抗 R_d を求め、(i)に代入して次の時刻の V_d を求める。次に、(iv)から

Fig.1 Configuration of the two-dimensional simulation code for discharge pumped XeCl excimer lasers.

Fig.2 Example of mesh used for the calculation. Only the right half of the discharge region was calculated because the region is symmetric. Boundary potentials calculated by the circuit equations are given at thick solid border lines (top: anode, bottom: cathode). Thin solid border lines are free boundaries. The rectangle swell at the bottom is a surface of a UV-preionization assembly where the cathode potential was assumed. Darken cells represent an insulator.

求められる電子密度 N_e , (iii)から求められる電子移動度を(ii)に代入し電位 ϕ を求める。境界条件は(i)から求められる V_d をアノード側 $\phi = V_d$, カソード側 $\phi = 0$ と与え, それ以外は自然境界(伝導+変位電流の流入ゼロ)とした。 ϕ から電界 E と放電電流 I_d を求める。電界計算は絶縁破壊前後は0.5nsごと, それ以外は1nsごとに行った。次に, (ii)で求めた各セルの電界 E を用いて, 各セルごとに(iii)で電子エネルギー分布を求め, 電子衝突の反応定数と電子移動度を求めた。隣のセルから流入する電子のエネルギー分布の影響は無視した。解法は均一解析²⁾に習い, 衝突断面積はOhwaら¹³⁾に従った。(iii)は各時刻に各セルで解くと時間がかかるので, 電界強度 E と準安定準位Xe原子密度に対するテーブルをあらかじめ作っておき, 補間して用いた。各セルごとに反応定数を(iv)に代入し, 粒子間の化学反応, 光子の増減を計算した。電子のレート方程式には, 粒子との衝突による増減の他に, (5)式の伝導電流に相当する電子の移流項と, 予備電離による電子の生成項を加えた。電子の拡散は無視した。移流項は,

$$\frac{dN_e}{dt} = \frac{l}{S} \mu_e N_e (E \cdot n) \quad (8)$$

をセルの各辺について足し合わせた。 l はセルの辺の長さ, S はセル面積, n は法線ベクトルである。空間と絶縁物の境界においてはシーヌが生じると考えられるが, 今回は電束密度の差に相当する表面電荷 $\sigma = \epsilon_D E_D \cdot n - \epsilon_0 E_0 \cdot n$ が生じるとして, その増減を空間部分の電子密度変化とした。レーザー出力は各セルの光子密度から計算した。反応定数はOhwaら¹³⁾に従った。レート方程式は差分法で, 刻みは0.025ns程度とし, 絶縁破壊前後は細かくして計算するとともに, 安定に解が求められることを確認した。

Fig.3 Time histories of electron density, photon density and electron temperature. Solid line represents the result of the 2D simulation while three dotted lines represent those of homogeneous simulations calculated respectively with different discharge width.

3. 結果と考察

計算対象は容量移行型放電励起XeClエキシマレーザーで, ガス組成Xe/HCl/Ne = 30/3/4560Torr, 充電電圧30kV, ストレージ容量129nF, ピーキング容量119nF, 電極は間隔22mm, 長さ92cm, 幅5cmのErnst型¹⁵⁾である。予備電離分布は3.2章での検討の場合を除き, 均一に 10^8cm^{-3} を与えた。

3.1 空間均一解析との比較

まず, 2次元解析(以下, 2次元)と従来の均一解析(以下, 均一)を比較した。Figure 3に電子密度, 光子密度, 電子温度の比較を示す。実線は2次元の電極間中央の値, 点線は均一で放電幅が2.5, 5.0, 7.0mmの結果である。均一で5.0mmのとき2次元とほぼ一致している。このとき, 電圧, 電流の時間変化も一致した。出力は2次元がやや小さめであったが, 同様の時間変化を示した。すなわち, 2次元と均一で大きな結果の違いはないが, 均一では放電幅に適切な値を与える必要があるのに対し, 2次元では放電幅を与えずに自動的に放電状態の計算を行うことができたようになった。また, 分布が計算されることにより出力の計算精度も向上したと考えられる。

ところで, 1章で述べたように著者らはトムソン散乱法により電子エネルギー分布計算モデルの評価を進めている。トムソン散乱法では, S/N 比が高い電極間中央部しか計測できない。本来この結果は2次元解析結果と比較すべきであるが, 電子-電子衝突を考慮するために計算が複雑となるため, 計算時間の短い均一解析を用いている。上記から, このような場合でも適切な放電幅を選べば, 均一解析を用いてよいと考えられる。

3.2 予備電離分布の放電への影響

予備電離の効果には, ①局所的な不均一性(ストリーマ放電)を防ぐ初期電子の生成, ②分布の主放電への影響, がある。①のための閾値は 10^7cm^{-3} 程度で¹³⁾, 10^8cm^{-3} 以上が安定な放電のために必要と考えられている。本コードでは①は模擬できない。そこで以下では, ①が満足された安定な

条件下で②がどう影響するかを検討する。

まず、均一に予備電離した場合の電離密度による出力変化を調べた。 $10^6 \sim 10^8 \text{ cm}^{-3}$ の範囲ではほとんど変化がなかった。 10^{10} cm^{-3} では予備電離を強くしたにもかかわらず約5%の出力が低下した。これは、放電抵抗が低くなり、エネルギー注入が減少したためと考えられる。しかし、安定な放電のためには強い予備電離をした方がよいと考えられる。

次に、Taylorらの予備電離実験¹³⁾にならって、分布を変化させて検討した。まずX方向(Fig.2で定義)を変化させた。 $X = 1.5 \sim 3.0 \text{ mm}$ をステップ部として密度を変化させ、他の部分を 10^8 cm^{-3} とすると、ステップ部が小さい (10^6 cm^{-3}) 場合には、他の部分(中央部)に放電が集中し、ステップ部は出力が得られなかった。これはTaylorの実験結果と一致している。ステップ部の電子密度増加が他の部分と比べて少ないのが原因である。逆にステップ部を大きく (10^{10} , 10^{12} cm^{-3}) すると、放電とレーザー出力がそこに集中した。このように、予備電離分布により出力分布を変化させることがわかった。そこで、出力幅を広げることを目指して、中央部を $b (10^8 \text{ cm}^{-3})$ とし $X = 25 \text{ mm}$ まで傾き $a (\text{cm}^{-3}/\text{mm})$ で単調増加する予備電離 $N_e(X)_{t=0} (\text{cm}^{-3})$ を仮定した。

$$N_e(X)_{t=0} = a|X| + b \quad (|X| < 25 \text{ mm})$$

$$= b \quad (|X| \geq 25 \text{ mm}) \quad (9)$$

これに近い分布はUV予備電離などでも得うる。これにより、Fig.4に示すように出力幅が広がった。

次に、Y方向分布として、陰極表面から8.6~13.4mmの電極間の中央部分に 10^6 cm^{-3} を与え、他の部分に 10^8 cm^{-3} を与えた場合と 10^8 cm^{-3} で均一な場合を比較した。ステップ部が弱い場合にはその部分の出力が低下し、Taylorの実験結果と一致した。ステップ部の陽極側は、電子の流入が少ないにもかかわらず、均一な場合と出力が変わらなかった。これは、電子がほとんど動かず(電子のドリフト速度は数 $\text{cm}/\mu\text{s}$)に周囲の原子と衝突を繰り返して増減する状態にあり、その増減はその場での電離と再結合によって支配されているためと考えられる。これは高気圧体積パルス放電の特徴と考えられる。

3.3 放電部構造の放電への影響

Fig.4 Laser intensity distribution along the X axis. Assumed preionization electron density distributions are defined as Eq. (9) with indicated coefficients a .

3.3.1 電位分布の時間変化

Figure 5に電位分布を示す。Figure 5 (a)の絶縁破壊前は(6)式の第1項の電子密度 N_e は無視できるほど小さく、変位電流に支配され、Sato⁶⁾やLazzaro⁷⁾の様に静電界を解いたものに近い。比較的均一な分布であるが、周囲の予備電離部や絶縁物の影響を受けている。放電部の設計にはこれらの影響を考慮する必要がある。

絶縁破壊が起きると(6)式第1項が無視できなくなり、Fig.5 (b)のように電位分布が大きく変化する。その後、伝導電流の連続性が電位分布を支配し、周囲にあまり影響されない均一な分布となる。これは、電子の生成、消滅と電界強度の増減がバランスし、電位分布が均一になる方向に系が動くためである。このように電位分布が放電により変化するので、出力分布の予測にはこのような解析が必要であると考えられる。

3.3.2 絶縁物の影響

Figure 5の構造では、予備電離ピンと陽極間の絶縁破壊を防ぐために絶縁物を設置している。(6)式と(7)式を比べると、絶縁物の方が空間よりも誘電率 ϵ が大きいので、絶縁破壊前の伝導電流が無視できる状態では絶縁物中の電界が弱くなる(Fig.5 (a))。この状態では周囲の電界が強くなるので、金属と絶縁物で囲まれた狭い空間などで局所的に放電がおこる可能性がある。

電子密度が増え空間の電界が伝導電流で支配されて来ると、空間の電界強度が低下し、絶縁物に電界が集中する。Figure 5 (b)の予備電離ピンと陽極間にこの現象が見られる。絶縁物の周囲の空間の電離が抑制されて、絶縁破壊が

Fig.5 Variation of potential distribution with time. (a) Before gas breakdown (180ns from the start of applying voltage). (b) After the gas breakdown (220ns).

Fig.6 Electron density distributions after the gas breakdown (220ns). (a) Without insulator. (b) With insulators.

Fig.7 HCl, HCl(v) and electron density distribution along X axis before, at and after the discharge peak (time = 260ns) in the case of high initial HCl concentration (30 Torr).

防がれる。Figure 6に絶縁物が存在する場合としない場合の絶縁破壊後の電子密度分布を示す。パルス放電であるため絶縁物があっても変位電流によって電流が流れるが、絶縁物によって陽極と予備電離部の間の放電が抑制されている。絶縁物に電界が集中して放電電圧のかかなりの割合が絶縁物にかかるので、注意して設計する必要がある。薄い絶縁物を用いると穴が開くことがあるが、これは、薄い空間の電界を緩和できず、また、絶縁物に電界が集中してしまうためと考えられる。

3.4 ハロゲン濃度の放電不安定性への影響

実験ではハロゲン濃度を高くすると放電が不安定になり出力が低下する。これは、放電が進むにつれて電子を付着すべきハロゲンが局所的に枯渇し、その領域の電子密度が暴走し、フィラメンテーションが生じるためである^{14,16)}。そこで、その様子を模擬した。ところが、HCl濃度を高くしたときのHClの局所的減少は、HCl濃度が低い場合よりも穏やかであり、電子密度の暴走は模擬できなかった。Figure 7にHClを30Torrに高くした場合のHCl, HCl(v), および電子のX軸方向分布を示す。時間とともに中央付近のHCl濃度が減少しているが、その代わりに付着確率がHClよりも高いHCl(v)が増加しているために、電子密度は暴走せずにむしろ中央付近で減少し、ピーク位置が放電幅方向に移動している。レーザー出力はHCl分圧3Torrの時と比べて半分ほどに減少したが、これはFig.8に示したXeCl*密度とレーザー出力パワー分布の時間変化からわかるように、放電の強い領域の移動につれてレーザー出力の領域が移動する過程でのロスが原因であり、フィラメンテーションが原因のロスではない。今後、陰極のホットスポットや、アバランシェ過程での確率的要因、予備電離の不均一性などのモデル化により、フィラメンテーションを模擬できるコードとする必要があると考えられる。

4. おわりに

放電励起エキシマレーザーの2次元解析コードを作成した。従来は入力として与えていた放電幅が自動的に計算されるようになった。また、以下の知見が得られた。

Fig.8 XeCl* density and laser power intensity distribution along X axis in the case of high initial HCl concentration (30 Torr).

- 1) 予備電離分布は放電分布および出力分布に影響を与える。
- 2) 均一電界電極でも周囲の構造によっては均一な電界が得られない。
- 3) プラズマ状態の変化にともない、電界分布は静的な分布から大きく変化する。
- 4) 絶縁物は、周囲の電界を破壊前は強め、破壊後は緩和する効果がある。

しかしながら、高ハロゲン濃度での放電不安定性のような、極局的な不均一性を原因とする放電状況は、今回の2次元解析モデルでは模擬できなかった。今後、このモデル化が必要と考えられる。

謝 辞

本論文をまとめるに当たり貴重なご助言をいただいた九州大学村岡 克紀教授、前田 三男教授、三菱重工業(株)水井 順一博士に感謝いたします。

参考文献

- 1) A. E. Green and C. A. Brau: IEEE J. Quantum Electron. **QE-14** (1978) 951.
- 2) 水波 徹, 前田 三男, 内野 修, 下村 修, 宮副 泰: レーザー研究 **9** (1981) 527.
- 3) H. Hokazono, K. Midorikawa, M. Obara, and T. Fujioka: J. Appl. Phys. **56** (1984) 680.
- 4) R. Sorkina, F.A. van Goor, and W. J. Witteman: Appl. Phys. B **55** (1992) 478.
- 5) F. Kannari and W. D. Kimura: J. Appl. Phys. **64** (1988) 500.
- 6) K. Uchino, T. Kubo, H. Dozono, H. Yamakoshi, M. Muraoka, M. Maeda, A. Takahashi, and M. Kato: Appl. Phys. B **61** (1995) 165.
- 7) T. Sato, K. Miyazaki, T. Hasama, I. Yamashita, M. Kato, S. Takahara, and J. Mizui: LEOS '89 UV2.1 (1989) 383.
- 8) P. Di Lazzaro, G. Giordano, L. Mezi, and C. E. Zheng: Optics and Laser Technology **26** (1994) 15.
- 9) M. J. Kushner, A. L. Pindroh, C. H. Fisher, T. A. Znotins, and J. J. Ewing: J. Appl. Phys. **57** (1985) 2406.
- 10) M. J. Kushner: J. Appl. Phys. **62** (1987) 101.
- 11) 明石 治朗, 伊達 広行, 酒井 洋輔, 田頭 博昭: 電気学会放電研究会資料 **ED-92-105** (1992) 107.
- 12) H. Fang and M. R. Perrone: IEEE Quantum Electron. **QE-30** (1994) 2369.
- 13) M. Ohwa and M. Obara: J. Appl. Phys. **59** (1986) 32.
- 14) R. S. Taylor: Appl. Phys. B **41** (1986) 1.
- 15) Gerard J. Ernst: Opt. Lett. **49** (1984) 275.
- 16) M. R. Osborne: Appl. Phys. B **45** (1988) 285.