

193 毫微米 ArF 准分子激光器

上官诚 袁才来 叶超 窦爱荣

(中国科学院上海光机所)

提要: 本文报导改进的 193 毫微米 ArF 准分子激光器, 单脉冲输出激光能量超过 200 毫焦耳。详细地研究了紫外光预电离对输出性能的影响。

An ArF excimer laser at 193 nm

Shangguan Cheng, Yuan Cailai, Ye Chao, Dou Airong

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract: In this paper an improved ArF excimer laser at 193 nm is reported. The single pulse output energy is over 200mj. The effect of UV-preionization on the laser output performances is discussed in detail.

引言

我们在文献 [1] 中介绍了紫外光预电离 ArF 准分子激光器的实验研究。本文介绍对 ArF 准分子激光器的改进和提高, 使激光器运转在更高的气体总压和放电电压水平上。并详细地研究了预电离参数的延迟时间、预电离电容、气体总压、预电离电压等对激光能量的影响。

器件结构和技术要点

器件由内径 84 毫米的玻璃圆筒做成, 黄铜电极, 镀镍, 张氏型面, 电极间距 2.1 厘米, 长 80 厘米, 有效放电体积 $2.1 \times 0.4 \times 80$ (厘米)³, 采用 LC 反转电路, 储能电容 $C_1 = 25$ 毫微法, 传输线电容 $C_2 = 12$ 毫微法。

改进雪崩放电准分子激光器性能, 必须解决下述几个关键问题: 1) 快的电压电流上升时间。为了缩短这个时间, 必须降低放电回路的电感量, 其中关键是球隙开关。球隙开关设计不当往往会产生很大的电感量。我们使用的同轴型低电感火花球隙开关, 具有尺寸小, 与平板电容的铜箔连接不用连线, 能耐 10 个大气压以上的压力等特点, 效果良好。其详细结构示于图 1。根据放电球隙开关的沟道电感值 15 毫微亨/厘米^[2] 进行估计, 此球隙开关的电感量不大于 5 毫微亨。2) 放电均匀性。均匀放电与电极形状、预电离方案和参数选择密切相关, 采用均匀场电极效果比较好, 对于稀有气体卤化物准分子激光器所用的窄型面电极来说, 选用张氏^[3] 均匀场电极设计方法比较合适。预电离的作用也是非常显著的。关于预电离参数的影响

收稿日期: 1981 年 6 月 26 日。

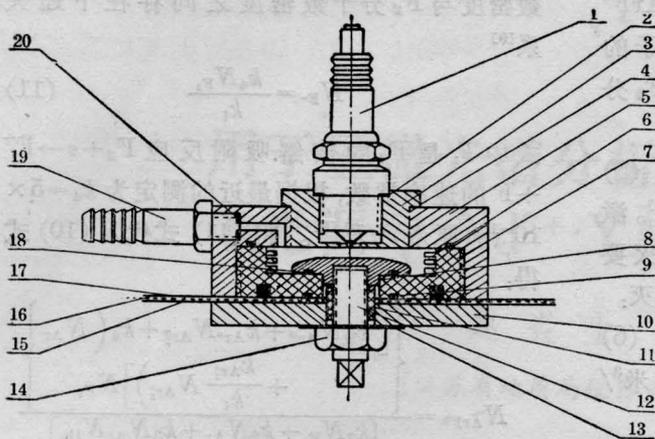


图1 低电感高压触发球隙

1—火花塞；2—火花塞垫圈；3—火花塞座；4、6、9、18—垫圈；5—壳体；7—绝缘体；8—电极；10—压板；11—绝缘套；12—螺栓；13—接线铜片；14—螺帽；15、17—铜箔；16—涂纶薄膜；19—气嘴；20—气嘴垫圈

和预电离板制作的技术细节等详见后文。3) 防腐蚀处理。F₂是腐蚀性极强的气体，对于器壁的腐蚀不仅损坏器件，而且产生多种杂质气体，污染激光混合物，降低激光能量，缩短激光器寿命。

二、激光能量随氟含量的变化及定性解释

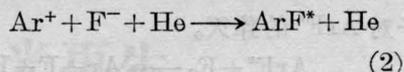
在提高气体总压时，最佳气体组成不同于较低运转压力时的气体组成。特别是氟含量的变化较为明显。实验结果示于图2。在气体总压为2个大气压时，最佳氟含量为0.4%左右；当提高到2.8大气压时，最佳氟含量降低至0.3%。其趋势是总气压增加，氟的百分含量应当降低。这种效应与ArF准分子的生成猝灭动力学以及光吸收过程有关。

氟化氩准分子激发态 ArF(2Σ⁺) 生成的主要过程是亚稳态 Ar* 和氟分子之间的“叉鱼”(harpooning)反应

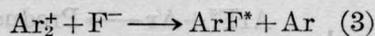


此反应的速度很快，速率常数 $k_H = 7.5 \times 10^{-10}$

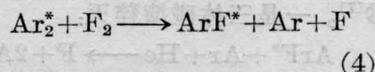
厘米³/秒^[4]。另一个重要过程是放电介质中间存在的氩离子 Ar⁺ 和氟负离子 F⁻ 之间的离子反应



离子复合速率没有测量过，估计速率系数为 $k_i = 10^{-6}$ 厘米³/秒^[5]。其次是分子离子反应：



和稀有气体准分子和氟的反应



反应速率常数分别为 $k_{\text{Ar}_2^+} = 1 \times 10^{-6}$ 厘米³/秒^[5] 和 $k_{\text{Ar}_2^*} = 3 \times 10^{-10}$ 厘米³/秒^[6]，但是在实际的激光介质体系中，Ar₂⁺ 和 Ar₂^{*} 的密度远较 Ar⁺ 和 Ar^{*} 的数密度低，大约相差二个数量级，所以 ArF 准分子的主要生成过程为(1)和(2)。

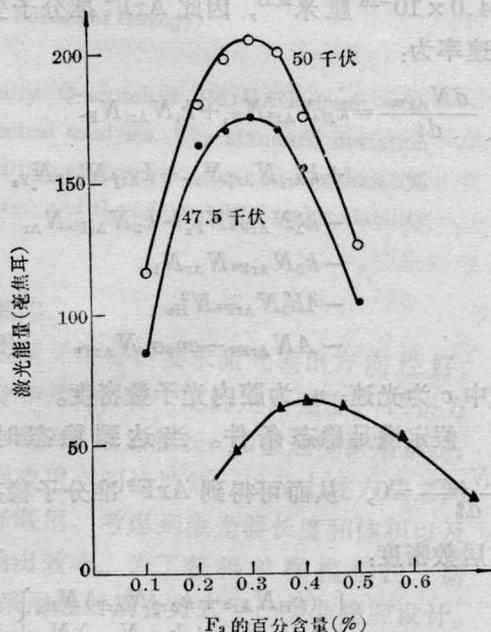
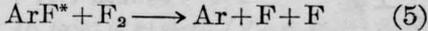


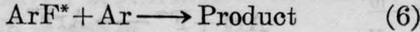
图2 输出激光能量随氟气百分含量的关系

○、●—总气压2.8大气压；20%Ar；预电离电压17千伏；预电离电容0.047微法；延迟时间0.6微秒
▲—总气压2.0大气压；20%Ar；预电离电压20千伏；预电离电容0.047微法；延迟时间0.6微秒

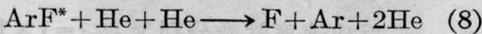
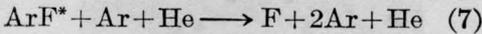
在 $F_2 + Ar + He$ 放电混合物中随着 ArF^* 准分子的快速生成也存在着 ArF^* 准分子的迅速猝灭过程。最重要的猝灭过程为 F_2 分子对 ArF^* 的猝灭。



其猝灭速率为 $k_1 = 1.2 \times 10^{-9}$ 厘米³/秒^[7]。激发态 ArF^* 分子直接被稀有气体原子猝灭要缓慢得多,有二种过程:一是二体碰撞猝灭:



其猝灭速率系数为 $k_2 = 9 \times 10^{-12}$ 厘米³/秒^[7]。一是三体碰撞猝灭:



其猝灭速率系数分别为 $k_3 = 3 \times 10^{-31}$ (厘米)⁶/秒和 $k'_3 = 3 \times 10^{-32}$ (厘米)⁶/秒^[5]。激发态 ArF^* 的损失过程还包括自发辐射和受激辐射损失,它由 ArF^* 的自发辐射寿命和受激辐射截面所决定,它们分别为 $\tau = 4.2$ 毫微秒(爱因斯坦系数 $A = 2.37 \times 10^8$ 秒⁻¹^[8]), $\sigma_s = 4.0 \times 10^{-16}$ 厘米²^[5], 因此 ArF^* 准分子变化速率为:

$$\begin{aligned} \frac{dN_{ArF^*}}{dt} = & k_H N_{Ar^*} N_{F_2} + k_i N_{Ar^+} N_{F^-} \\ & + k_{Ar_1^+} N_{Ar_1^+} N_{F^-} + k_{Ar_2^+} N_{Ar_2^+} N_{F^-} \\ & - k_1 N_{ArF^*} N_{F_2} - k_2 N_{ArF^*} N_{Ar} \\ & - k_3 N_{ArF^*} N_{Ar} N_{He} \\ & - 4k'_3 N_{ArF^*} N_{He}^2 \\ & - AN_{ArF^*} - cn_\nu \sigma_s N_{ArF^*} \quad (9) \end{aligned}$$

式中 c 为光速; n_ν 为腔内光子数密度。

假定满足稳态条件。当达到稳态时,

$\frac{dN_{ArF^*}}{dt} = 0$, 从而可得到 ArF^* 准分子稳态布居数密度:

$$N_{ArF^*} = \frac{\left\{ \begin{aligned} & (k_H N_{Ar^*} + k_{Ar_2^+} N_{Ar_2^+}) N_{F_2} \\ & + (k_1 N_{Ar^+} + k_{Ar_1^+} N_{Ar_1^+}) N_{F^-} \end{aligned} \right\}}{\left\{ \begin{aligned} & k_1 N_{F_2} + k_2 N_{Ar} + k_3 N_{Ar} N_{He} \\ & + 4k'_3 N_{He}^2 + A + cn_\nu \sigma_s \end{aligned} \right\}} \quad (10)$$

根据放电动力学的稳态分析, F^- 离子的

数密度与 F_2 分子数密度之间存在下述关系^[9]

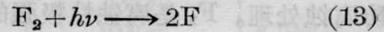
$$N_{F^-} = \frac{k_4 N_{F_2}}{k_i} \quad (11)$$

式中 k_4 是 F_2 的离解吸附反应 $F_2 + e \rightarrow F^- + F$ 的速率常数,根据最近的测定为 $k_4 = 5 \times 10^{-10}$ (厘米)³/秒^[5]。将 (11) 式代入 (10) 式得:

$$N_{ArF^*} = \frac{\left\{ \left[\begin{aligned} & k_H N_{Ar^*} + k_{Ar_2^+} N_{Ar_2^+} + k_4 \left(N_{Ar^+} \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{k_{Ar_1^+}}{k_i} N_{Ar_1^+} \right) \right] N_{F_2} \right\}}{\left\{ \begin{aligned} & k_1 N_{F_2} + k_2 N_{Ar} + k_3 N_{Ar} N_{He} \\ & + 4k'_3 N_{He}^2 + A + cn_\nu \sigma_s \end{aligned} \right\}} \quad (12)$$

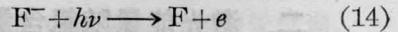
除 ArF^* 准分子的猝灭过程之外,在氟化氩准分子激光器中有几个光吸收过程可能是重要的,其中包括:

氟分子的光离解(在激光波长上)过程



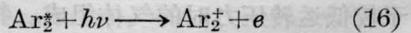
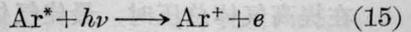
氟的光吸收截面 σ_{F_2} 在波长短于 210 毫微米波长未测定^[10]。

放电时产生的氟负离子的电子光解吸收过程



其吸收截面是 $\sigma_{F^-} = 1.0 \times 10^{-17}$ 厘米²^[11]。

激发稀有气体原子和分子的光电离过程



它们的吸收截面分别为 $\sigma_{Ar^*} = 1.0 \times 10^{-18}$ 厘米²^[12] 和 $\sigma_{Ar_2^*} = 4 \times 10^{-18}$ 厘米²^[6]。

在同时考虑上述这些光吸收过程下,腔内光子数密度的速率方程为:

$$\begin{aligned} \frac{dn_\nu}{dt} = & cn_\nu \sigma_s N_{ArF^*} + \frac{cn_\nu}{2l} \ln R \\ & - cn_\nu [\sigma_{F_2} N_{F_2} + \sigma_{F^-} N_{F^-} \\ & + \sigma_{Ar^*} N_{Ar^*} + \sigma_{Ar_2^*} N_{Ar_2^*}] \quad (17) \end{aligned}$$

上式中第一项是受激辐射项。第二项是输出耦合镜的反射部分, R 是输出耦合镜的反射率; l 是腔长。第三项就是上述诸吸收过程引起的光子数密度的减少。

当达到稳态时, $\frac{dn_v}{dt} = 0$, 由此可求得稳

$$n_v = \frac{1}{c\sigma_s} \left\{ \frac{\sigma_s \left[k_{11} N_{Ar^*} + k_{Ar_2^*} N_{Ar_2^*} + k_4 \left(N_{Ar^+} + \frac{k_{Ar_2^*}}{k_i} N_{Ar_2^*} \right) \right] N_{F_2}}{\left[\left(\sigma_{F_2} N_{F_2} + \sigma_{F_2} \frac{k_4}{k_i} N_{F_2} + \sigma_{Ar^*} N_{Ar^*} + \sigma_{Ar_2^*} N_{Ar_2^*} \right) - \frac{1}{2l} \ln R \right]} - (k_1 N_{F_2} + k_2 N_{Ar} + k_3 N_{Ar} N_{He} + 4k_3' N_{He}^2 + A) \right\} \quad (18)$$

式中第一项的分子代表 ArF^* 准分子的各种生成过程, 分母代表诸吸收过程的影响。第二项代表 ArF^* 准分子的各种猝灭损失过程。输出的光子数密度是正比于腔内的光子数密度的, 因此输出激光能量也应正比于腔内光子数密度。从(18)式可以看出: 输出激光能量随着 F_2 分子数密度(直接、间接地影响 ArF^* 准分子的生成)的增加而增加, 与氟分子有关的光吸收过程成反比; F_2 与 ArF^* 准分子的碰撞猝灭作用将引起激光能量的降低(从(18)式也可看出其他过程对激光能量的影响)。 F_2 分子对 ArF^* 准分子的生成、猝灭以及 F_2 的光吸收几种相反过程的存在, 相互制约了氟含量的变化, 使得激光能量随氟分子数密度的变化存在一个最佳值。

将实验所得相应于不同总气压下输出激光能量最大的氟百分含量化成氟分子数密度, 我们得到近似相等的氟分子数密度值: 当 $P = 2.0$ 大气压, $\alpha(m) = 0.4\%$, 则 $N_{F_2} = 2.2 \times 10^{17}$ 厘米⁻³; 当 $P = 2.8$ 大气压, $\alpha(m) = 0.3\%$, 则 $N_{F_2} = 2.3 \times 10^{17}$ 厘米⁻³。通过上述这种极端简化的分析, 我们对各种反应过程对激光能量的影响可以获得一个定性的理解。

三、输出激光能量和效率随充电电压的关系

图3是在固定气体组成、总压和预电离条件下, 输出激光能量随主放电充电电压的实验曲线。在充电电压比较低时, 激光能量

态光子数密度。考虑到(11)和(12), 那么可求得稳态 n_v 对 N_{F_2} 的依赖关系:

的增加比较快, 当电压进一步增加时激光能量增加就缓慢起来。图中黑点表示的那条曲线是不同充电电压时的总效率。从图中看出, 在电压很低时, 效率是相当低的, 在电压增高时, 效率很快地增高, 然后基本上无多大变化, 只是在电压很高时, 才稍有降低。

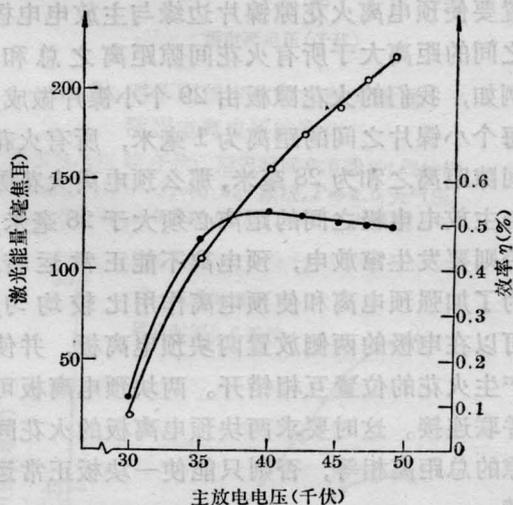


图3 输出激光能量和效率与主放电电压的关系

总气压 2.75 大气压; 混合气体组成: 0.4% F_2 , 20% Ar , 79.6% He ; 预电离电压 21 千伏; 预电离与主放电之间的延迟时间 0.6 微秒

四、预电离的作用

快速横向雪崩放电本质上是不稳定放电, 特别是在高压和高电场下, 一旦气体介质被击穿, 电子迅速地增殖, 放电等离子体阻抗崩溃, 放电的空间不均匀性随着时间迅速增长, 并发展成弧。为了抑制这种不稳定性,

可以在放电以前,预先使气体电离,造成一定的初始电子密度。紫外光预电离就是能达到上述目的的一种较简单方法。

我们采用放电火花隙板来产生紫外光源,其具体的结构在[1]中已有描述,这里仅指出两点技术细节。1) 几十个火花隙产生的火花要求比较均匀。为了能达到这一要求,每二个镍片之间的距离要保持相同,距离的差异会影响火花的强弱和大小。同时,每个镍片的两端要做成弧形,并且要磨光。2) 预电离板放置的位置要保证预电离和主放电电极之间不发生窜放电。要实现这一点,首先必须在预电离放电期间,两个主放电电极是零电位。其次预电离板放置的几何位置要使预电离火花隙镍片边缘与主放电电极之间的距离大于所有火花间隙距离之总和。例如,我们的火花隙板由29个小镍片做成,每个小镍片之间的距离为1毫米,所有火花间隙距离之和为28毫米,那么预电离火花隙与主放电电极之间的距离必须大于28毫米,否则要发生窜放电,预电离不能正常运转。为了加强预电离和使预电离作用比较均匀,可以在电极的两侧放置两块预电离板,并使产生火花的位置互相错开。两块预电离板可并联连接。这时要求两块预电离板的火花间隙的总距离相等,否则只能使一块板正常运转。

预电离和主放电之间在时间上的匹配是相当重要的。一般主放电在预电离放电电流最大值时,也即预电离闪光荧光强度峰值时开始放电,输出激光能量最大。

图4是在强预电离($C_p=0.047$ 微法)情况下,输出激光能量随预电离和主放电之间延迟时间的变化关系。激光能量随延迟时间的增加线性地降低。这与强电负性混合气体的预电离机理有关。激光混合物含有He、Ar和 F_2 ,它们都有非常高的电离能量,其电离势分别为:He:24电子伏,Ar:15.7电子伏, F_2 :17.8电子伏;所以最初体积预电离

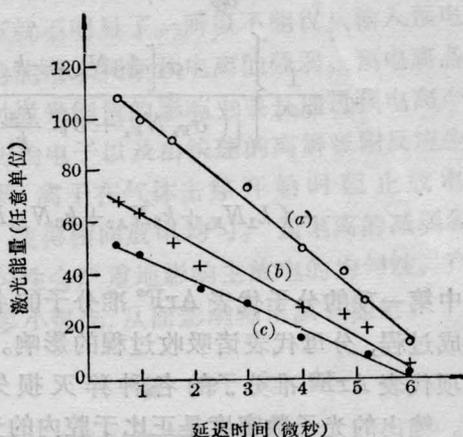
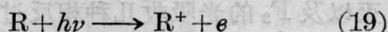


图4 输出激光能量随预电离与主放电之间延迟时间的变化关系

预电离电容0.047微法;混合气体组成:0.31% F_2 , 20.5%Ar, 79.2%He;总气压2.4大气压
a—主放电电压45千伏;b—主放电电压40千伏;
c—主放电电压35千伏

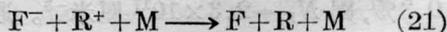
产生的电子源可能来自存在于容器中的有机杂质,有机杂质的电离需要 $<1300 \text{ \AA}$ 波长的紫外光(按电离势计算)



所生成的电子立即被 F_2 分子离解吸附形成氟负离子 F^- :



其速度很大,近似地为 10^{-9} 厘米³/秒^[5]。紫外光预电离的电子在它们生成以后大约1微微秒^[13]的时间都变成成为 F^- , F^- 离子通过三体离子-离子复合消失:



离子-离子复合是相当缓慢的,速率常数大约是 2×10^{-6} 厘米³/秒^[13]量级。因此在预电离放电以后几个微秒由于 F^- 离子的存在为主放电提供预电离电子,起着长寿命电子源的作用,只要主放电电场加上, F^- 离子便很易放出电子。所以在预电离闪光以后一段时间内,预电离效果还相当好。 F^- 离子密度通过离子-离子复合过程随时间的变化,在初始阶段($\ll 1$ 微秒)呈指数衰减,在1微秒以后,衰减过程基本上呈线性变化^[13],这也就

说明了激光能量随延迟时间的变化趋势。对于比较弱的预电离，激光能量随延迟时间的变化示于图 5，基本上呈现指数衰减的形式，最优延迟时间小于 0.5 微秒，它受预电离电容量的影响很大。

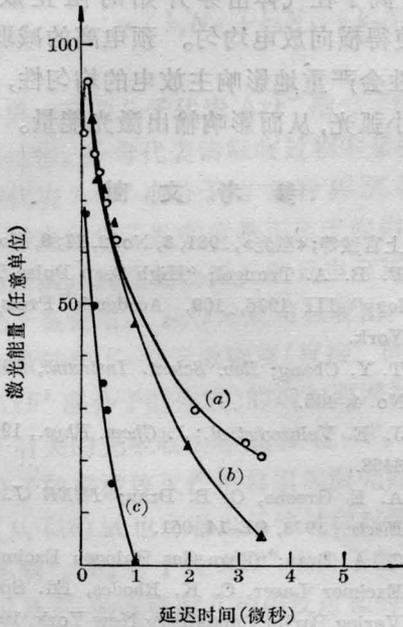


图 5 对于不同的预电离电容输出激光能量随延迟时间的关系

主放电电压 40 千伏；预电离电压 15 千伏；混合气体组成：0.3%F₂，20%Ar，79.7%He；气体总压 2.4 大气压 a—C_p=0.024 微法；b—C_p=0.012 微法；c—C_p=0.006 微法

我们考察了对于不同的预电离电容，预电离电压对输出激光能量的影响。图 6 示出了实验结果。在预电离电容较小时，预电离电压的影响是比较大的，在预电离电压增加到一定数值时，呈现饱和现象。当电容量增加时，预电离电压的影响减小。当电容量增加到一定值时，例如在我们的实验中 C_p=0.047 微法时，预电离电压的影响就不很明显了。

图 7 是在固定预电离电容和延迟时间下，对于不同的充气总压，激光能量随预电离电压的关系。从图上看，在不同的气体总压下(配以相应的主放电电压)，变化趋势基

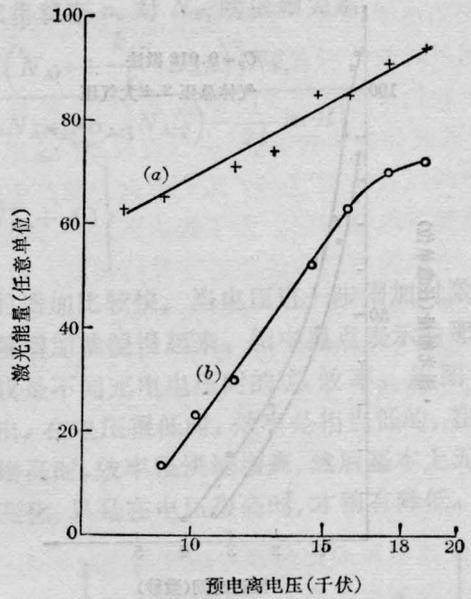


图 6 对不同预电离电容激光能量随预电离电压的变化

主放电电压 45 千伏；延迟时间 0.6 微秒；气体组成同图 5。(a)—C_p=0.024 微法，P=2.5 大气压；(b)—C_p=0.012 微法，P=2.8 大气压

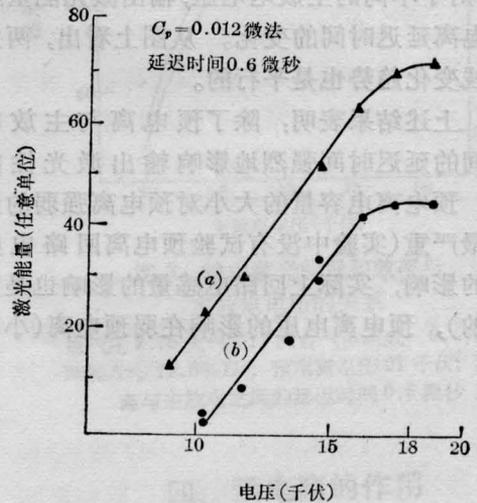


图 7 对于不同的充气总压激光能量随预电离电压的关系

C_p=0.012 微法；延迟时间 0.6 微法；气体组成同图 5 (a)—P=2.8 大气压，U_m=45 千伏；(b)—P=2.5 大气压，U_m=40 千伏

本上是平行的。

图 8 是在固定预电离电容和气体总压

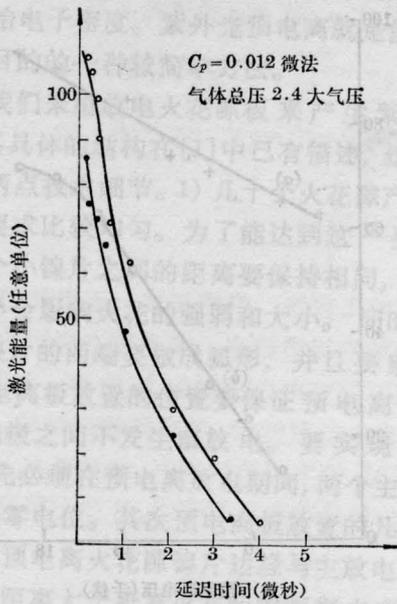


图8 在固定预电离电容和气体总压下,对于不同的主放电电压,输出激光能量随延迟时间的关系
预电离电压 15 千伏;气体组成同图 5

下,对于不同的主放电电压,输出激光能量随预电离延迟时间的变化。从图上看,两条曲线变化趋势也是平行的。

上述结果表明:除了预电离与主放电之间的延迟时间强烈地影响输出激光性能外,预电离电容量的大小对预电离强弱的影响最严重(实验中没有试验预电离回路电感量的影响,实际上回路电感量的影响也是重要的),预电离电压的影响在弱预电离(小电

容量)情况下显得比较明显,而在强预电离情况下就不明显了。所以不能仅从输入预电离板的能量来判断预电离的强弱。预电离各因素对激光能量的影响主要是通过预电离产生的初始电子以及由快速的离解吸附反应生成的 F^- 离子在气体击穿开始时阻止放电成弧,使得横向放电均匀。预电离的减弱和不均匀性会严重地影响主放电的均匀性,产生许多小弧光,从而影响输出激光能量。

参 考 文 献

- [1] 上官诚等;《激光》,1981, 8, No. 2, 17; 8, No. 3, 50.
- [2] F. B. A. Trunzel; "High Seep Pulse Technology" III 1976, 109, Academic Press, New York.
- [3] T. Y. Chang; *Rev. Scient. Instrum.*, 1973, 44, No. 4, 405.
- [4] J. E. Velazco *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1976, 65, 3468.
- [5] A. E. Greene, C. B. Brau; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1978, QE-14, 951.
- [6] C. A. Brau; "Rare Gas Halogen Excimers" in *Excimer Laser*, C. K. Rhodes, Ed. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1979.
- [7] M. Rakni *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, 31, 79.
- [8] T. H. Dunning, Jr, P. J. Hay; *J. Chem. Phys.*, 1978, 69, 134.
- [9] R. C. Sze; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1979, QE-15, 1338.
- [10] R. K. Steunenber, R. C. Vogel; *J. Amer. Chem. Soc.*, 1956, 78, 901.
- [11] A. Mandl; *Phys. Rev. (A)*, 1971, 3, 251~255.
- [12] H. A. Hyman; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, 31, 14.
- [13] J. Hsia; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, 30, 101.