MATEMATICKO-FYZIKÁLNÍ
FAKULTA
Univerzita Karlova

DISERTAČNÍ PRÁCE

Tomáš Burian

Spektroskopické studium interakcí fokusovaného svazku rentgenového laseru s hmotou

Katedra fyziky povrchů a plazmatu

Vedoucí disertační práce: Ing. Libor Juha, CSc.

Studijní program: Fyzika

Studijní obor: Fyzika plazmatu a ionizovaných prostředí

Praha 2019

Prohlašuji, že jsem tuto disertační práci vypracoval samostatně a výhradně s použitím citovaných pramenů, literatury a dalších odborných zdrojů.

Beru na vědomí, že se na moji práci vztahují práva a povinnosti vyplývající ze zákona č. 121/2000 Sb., autorského zákona v platném znění, zejména skutečnost, že Univerzita Karlova má právo na uzavření licenční smlouvy o užití této práce jako školního díla podle § 60 odst. 1 autorského zákona.

V Praze dne Podpis

V prvé řadě děkuji svému školiteli Ing. Liborovi Juhovi, CSc. za trvalý zájem a všestrannou pomoc při mém výzkumu, stejně jako za přínosné rady a připomínky při vypracovávání předkládané práce. Za účinnou pomoc, především při dokončení práce, bych chtěl také poděkovat konzultantovi doc. RNDr. Janovi Wildovi, CSc. z KFPP MFF UK. Můj dík patří i kolegům Mgr. Jaromírovi Chalupskému, Ph.D., Ing. Luďkovi Vyšínovi, Ph.D., Mgr. Věře Hájkové a Ing. Martině Toufarové, Ph.D. z Oddělení radiační a chemické fyziky Fyzikálního ústavu AV ČR, v.v.i. především za spolupráci při realizaci náročných interakčních experimentů a analýze, zpracování a interpretaci naměřených dat. Stejně tak bych rád poděkoval i řadě dalších tuzemských a zahraničních spolupracovníků, díky kterým a se kterými jsem se mohl podílet na unikátních experimentálních kampaních s EUV, SXR a RTG lasery na volných elektronech FLASH, LCLS, FERMI a SCSS a plazmovými zdroji (především PALS a CSU). Velký dík za trpělivost a podporu si zaslouží také moje rodina.

Název práce: Spektroskopické studium interakcí fokusovaného svazku rentgenového laseru s hmotou

Autor: Tomáš Burian

Katedra: Katedra fyziky povrchů a plazmatu

Vedoucí disertační práce: Ing. Libor Juha, CSc., Oddělení radiační a chemické fyziky, Fyzikální ústav AV ČR, v.v.i.

Abstrakt: Předkládaná práce se zabývá studiem a popisem dějů probíhajících během interakce intenzivních krátkovlnných laserových impulzů s hmotou a bezprostředně po ní. Pomocí emisní spektroskopie v různých spektrálních oborech a hmotové spektroskopie iontů byl zkoumán extrémní stav hmoty (horké husté laserové plazma a laserem prohřátá hustá hmota – HDM a WDM) buzený a čerpaný dvěma různými typy zdrojů koherentního záření (lasery na volných elektronech a plazmové lasery) generujícími ve spektrálních oborech od extrémní ultrafialové do rentgenové oblasti. Během těchto experimentů byl poprvé pozorován a vysvětlen jev saturované absorpce měkkého rentgenového záření v hliníkové WDM. Dále byl v takovém plazmatu zkoumán efekt snížení ionizačního potenciálu. Získaná data vykazují velmi dobrou shodu se simulacemi hustého plazmatu pomocí Eckerova-Kröllova modelu. Optická emisní spektroskopie pak podporuje představy o klíčové roli rychlých a účinných rekombinačních procesů probíhajících v ablačním výtrysku z pevné látky ozářené krátkovlnným laserem s volnými elektrony. Bylo ukázáno, že technikami hmotové spektroskopie lze zkoumat jak děje odehrávající se uvnitř ablačního výtrysku, tak i chemické složení ozařované látky. Pomocí optické emisní spektroskopie byl dále zkoumán jev saturace radioluminiscence scintilačního krystalu Ce:YAG. Byla stanovena hranice absorbované dávky, do které lze saturační jevy zanedbat. Pro Ce:YAG a další scintilační materiály (ZnO a $PbWO_4$) byly navíc určeny limitní ozařovací podmínky vedoucí k trvalému poškození krystalu. Ramanova spektroskopie pomohla identifikovat proces vytváření dvojných vazeb C=C uvnitř materálu PMMA ozářeného rentgenovým laserovým zářením. Na základě získaných informací byly navrženy matematické modely eroze PMMA indukované mnoha laserovými impulzy na fluencích pod ablačním prahem pro jeden impulz. Predikce těchto modelů vykazují velmi dobrou shodu s naměřenými daty.

Klíčová slova: spektroskopie, laserové plazma, laserová ablace, laser na volných elektronech, plazmový laser, extrémní ultrafialové záření, rentgenové záření

Title: The spectroscopy study of focused short-wavelength laser-matter interactions

Author: Tomas Burian

Department: Department of Surface and Plasma Science

Supervisor: Ing. Libor Juha, CSc., Department of Radiation and Chemical Physics, Institute of Physics of the Czech Academy of Sciences, Prague

Abstract: This thesis is focused on processes occurring during and immediately after an interaction of intense short-wavelength laser pulses with matter. Extreme states of matter (warm dense matter - WDM and hot dense matter - HDM), induced by EUV/SXR/X-ray lasers of two kinds, i.e., free-electron lasers (FEL) and plasma-based lasers, were investigated by emission spectroscopy over various spectral ranges and mass spectroscopic techniques. Absorption/transmission experiments revealed an effect of saturable absorption of soft X-ray laser radiation in aluminium WDM. Then, an ionisation potential depression (IPD) in dense plasmas was investigated by means of X-ray emission spectroscopy. Results obtained with the X-ray FEL-produced plasma exhibit very good agreement with computer simulations considering the Ecker-Kröll model. Analysis of optical emission spectra (OES) supports the key role played by fast recombination processes in the ablation plume created by focused short-wavelength laser beams on the solid target surface. Mass spectroscopy provides information both about various processes occurring in expanding ablation plumes and on the chemical (mostly elemental and isotopic) composition of the irradiated target. For full and correct analysis of the beam footprint on a scintillator screen, an experimental study of FEL-induced radioluminescence saturation is required. Optical emission from an FEL-illuminated Ce:YAG crystal was recorded by OES. A linear response range was investigated experimentally. Together with other scintillators, i.e., ZnO and PbWO4, Ce:YAG damage thresholds were determined for a single SXR-FEL pulse. In poly(methyl methacrylate) – PMMA, the C=C double bond formation was revealed by Raman spectroscopy. Based on the spectroscopy results, two rate-equation models were developed to describe a sub-threshold erosion induced in PMMA by multiple FEL pulses. A very good agreement was achieved between theoretical predictions and experimental data.

Keywords: spectroscopy, laser plasma, laser ablation, free-electron laser, plasma-based laser, extreme ultraviolet radiation, X-rays

Obsah

1. Úvod 2
1.1 Stav problematiky a předcházející výzkum 4
2. Cíle 12
3. Interakce krátkovlnných svazků s pevnou fází 13
3.1 Absorpčně-transmisní měření se svazky SXR/RTG laserů 13
3.2 Studium hustého plazmatu pomocí krátkovlnné emisní spektroskopie 16
3.3 Může být WDM diagnostikována OES a podobnými technikami? 19
3.4 Jaké ionty emituje plazma vytvořené EUV laserem a k čemu nám tato emise může posloužit? 21
3.5 Odezva anorganických scintilátorů na ozáření FEL impulzy 24
3.6 Spektroskopie nevratných změn indukovaných v různých materiálech krátkovlnným laserovým zářením 28
4. Souhrn výsledků a výhledy pro další výzkum 33
5. Závěr 38
6. Literatura 40
7. Příloha 47
7.1 Seznam přiložených prací 47
7.2 Autorský podíl na dosažených výsledcích 49

1. Úvod

Krátce po objevu prvního laseru, který generoval záření ve viditelném spektru (čára 693,4 nm emitovaná ionty Cr^{3+} v rubínové matrici) a byl publikován v roce 1960 [1], se někteří fyzici začali zabývat otázkou, zda by nebylo možné sestrojit na stejném nebo podobném principu také zdroj koherentního rentgenového záření. Ukázalo se však, že dosáhnout zvýšení energie takto generovaných fotonů o dva až tři řády není tak snadné, jak zpočátku předpokládali. Rané, nepříliš úspěšné experimenty proběhly již začátkem sedmdesátých let. Detailní výklad, který shrnuje specifika rentgenového laseru a s nimi související překážky pro jeho konstrukci, je dostupný v referativním článku [2].

První nezpochybnitelná laserová akce byla v měkkém rentgenovém oboru pozorována až téměř čtvrtstoletí po objevu laseru – v červenci 1984 v *Lawrence Livemore National Laboratory* (LLNL). Publikována pak byla v roce 1985 [3]. Aktivním prostředím prvního rentgenového laseru bylo selenové plazma buzené a čerpané výkonovým optickým laserovým systémem *Novette* (v uspořádání dvou protiběžných svazků druhé harmonické o vlnové délce 532 nm). K zesílení spontánní emise (ASE – *Amplified Spontaneous Emission*) docházelo na neonu podobných iontech selenu (Se^{24+}). Volné elektrony zde srážkami vybudily elektrony vázané v iontech Se^{24+}, a to z hladiny 2p na hladiny 3p a 3s, které při zářivém přechodu na hladinu 2s následně emitovaly fotony na vlnových délkách 20,63 a 20,96 nm. Toto schéma bylo k realizaci krátkovlnného laseru poprvé navrženo v polovině sedmdesátých let Žerichinem, Košelevem a Letochovem [4] a v následující dekádě ruskou školou teoreticky dále rozpracováno. V první polovině osmdesátých let proběhly ještě experimenty s rentgenovými lasery čerpanými jadernou explozí (byly součástí programu svazkových zbraní vyvíjených v rámci SDI – *Strategic Defense Innitiative*) a byla registrována nadějná emise z uhlíkového laserového plazmatu ovlivněného vloženým magnetickým polem [5]. Vzhledem k tomu, že tyto výsledky jsou těžko ověřitelné a reprodukovatelné, je prvenství v úsilí o dosažení laserové akce v měkkém rentgenovém spektrálním oboru připisováno Dennisi Matthewsovi, Peteru Hagelsteinovi a kol. [3].

Předmětem předkládané dizertační práce je studium interakce svazků krátkovlnných – tedy extrémních ultrafialových (EUV – *Extreme UltraViolet*), měkkých rentgenových (SXR – *Soft X-Ray*) a rentgenových (RTG) – laserů s hmotou

a jejích důsledků s využitím spektroskopických technik. Z hlediska zvolených technik můžeme předmět práce rozdělit do následujících pěti směrů:

- Spektrální charakterizace emise vysokoenergetických fotonů (EUV/SXR/RTG) z plazmatu vytvořeného svazkem krátkovlnného laseru fokusovaného na povrch pevných látek
- Spektrální charakterizace emise nízkoenergetických fotonů (OES – *Optical Emission Spectroscopy*) z plazmatu vytvořeného svazkem krátkovlnného laseru fokusovaného na povrch pevných látek
- Hmotová spektroskopie (MS – *Mass Spectrometry*) iontů emitovaných z povrchu pevných látek ozářených fokusovanými svazky EUV/SXR laserů
- Luminiscence scintilačních materiálů indukovaná krátkovlnnými lasery a studium nevratného poškození takových látek EUV/SXR/RTG laserovým zářením
- *Ex situ* spektroskopická zkoumání nevratných změn vyvolaných na površích pevných látek působením fokusovaných svazků krátkovlnných laserů různých typů.

V následující kapitole budou uvedeny cíle, které byly v rámci mého studia pro každý z výše uvedených směrů vytýčeny. Další část práce obsahuje veškeré relevantní výsledky související s danou problematikou. Každému z dílčích směrů je zde věnována samostatná podkapitola obsahující i diskuzi a komentáře dosažených výsledků, jejích přínos a význam pro další výzkum. Komplexnímu zhodnocení mého dosavadního výzkumu jakož i plánům a perspektivě je věnována kapitola *Souhrn výsledků a výhledy pro další výzkum*. Stručné shrnutí je uvedeno v *Závěru*. Nakonec uvádím seznam použité literatury, ze které jsem čerpal. Citované práce, jichž jsem spoluautorem, jsou zde barevně zvýrazněny.

Na soubor původních prací, jichž jsem spoluautorem a jejichž obsah úzce souvisí s jednotlivými dílčími tématy, se odkazuji referencemi ve tvaru [P1] – [P10]. Jejich soupis spolu s přetiskem každé z nich tvoří zvláštní přílohu této práce. Je zde také shrnuta moje účast na souvisejících experimentech a moje osobní přispění k dosaženým výsledkům.

Shrňme nyní výzkum v oblastech souvisejících s předkládanou dizertační prací, který předcházel experimentům popisovaným v kapitole 3 a na který tyto

experimenty volně navázaly s cílem objasnit podstatu některých pozorovaných jevů, zpřesnit dosažené výsledky či rozšířit platnost některých tvrzení na více spektrálních oborů.

1.1 Stav problematiky a předcházející výzkum

Přestože je LLNL jedním ze světových středisek výzkumu laserového plazmatu, nebylo využití prvních rentgenových laserů ke generaci tohoto specifického stavu hmoty primárně směřováno. Cílem vývoje byl přechod plazmových laserů ke kratším vlnovým délkám tak, aby dosáhly tzv. vodního okna, tedy spektrálního intervalu vymezeného absorpčními K hranami uhlíku (4,4 nm) a kyslíku (2,3 nm), kde uhlík silně absorbuje, zatímco kyslík zůstává víceméně transparentní. Zde by takové zdroje koherentního záření mohly být využity pro zobrazování uhlíkových struktur v biologických objektech obsahujících značný podíl vody s vysokým kontrastem a extrémním prostorovým rozlišením. Detailní popis jednotlivých kroků podniknutých při konstrukci takových zařízení je podán např. v knize [6] a přehledových článcích [7-10]. Je tam též podrobně popsáno, proč nebyl zmíněný směr výzkumu příliš úspěšný a proč se lasery těchto typů v rentgenové mikroskopii a dalších metodách zobrazování mikrostruktur příliš neosvědčily a neuplatnily. Hledalo se tedy jejich uplatnění i ve fyzice plazmatu, i když původně se s nimi počítalo spíše jako s nástroji k sondování hustého plazmatu než k jeho produkci. Mělo jít například o využití SXR laseru (konkrétně neonu podobného yttriového laseru vyzařujícího na vlnové délce 15,5 nm) k buzení rezonanční fluorescence iontů (zde vodíku podobné ionty sodíku nebo heliu podobné ionty hořčíku) v plazmatu [11]. S příchodem široce frekvenčně proladitelných laserových systémů na volných elektronech (viz dále) však plazmatické lasery generující záření s fixní vlnovou délkou ustoupily v tomto a podobných směrech poněkud do pozadí.

K fokusaci svazku SXR laseru na povrch pevného terče za účelem generace velmi hustého plazmatu se přistoupilo až s dalším vývojem plazmových laserů s ustáleným ziskem, kdy se zlepšily parametry svazku a snížily požadavky na čerpací, typicky optický laser. Ke generaci a čerpání aktivního prostředí laseru se začal využívat koncept předpulz – hlavní impulz, kdy předpulz vytvořil na povrchu zvoleného terče předionizované plazma a hlavní impulz v něm pak zajistil dosažení podmínek, které jsou pro laserovou akci optimální. V tomto specifickém případě se optimálními podmínkami rozumí co možná nejvyšší abundance neonu či niklu

podobných iontů a zároveň jejich účinná kolizní excitace prostřednictvím volných elektronů. Empiricky se dospělo k nalezení nejvýhodnějšího zpoždění a poměru energií resp. intenzit mezi předpulzem a hlavním impulzem [12-14].

I tyto SXR lasery však stále vyžadovaly pro své čerpání velké výkonové laserové systému, kterých bylo ve světě velmi málo. Poptávka po stolních krátkovlnných laserech podnítila výzkum využití kapilárního výboje v plynech pro vytvoření plazmatického prostředí požadovaných parametrů a jeho současné čerpání – dnes tyto systémy označujeme zkratkou CDL (*Capillary-Discharge Laser*) [15-19]. Dosud nejvyšších výstupních energii a největšího rozšíření doznaly lasery využívající elektrický povrchový výboj na stěně keramické kapiláry plněné argonem. Povrchovým výbojem teče proud dost vysoký na to, že jím indukovaná Lorentzova síla odtrhne plazma od povrchu kapiláry a stlačí ho k jejímu středu (tzv. pinč-efekt). V této fázi dojde k laserové akci v režimu ustáleného zisku (QSS – *Quasi-Steady State*) z neonu podobných iontů argonu (Ar^{8+}) kolizně excitovaných volnými elektrony ve výboji.

Svazky krátkovlnných plazmových laserů obou výše uvedených typů lze bez větších problémů fokusovat zrcadlem s multivrstvou odrazivou vrstvou, kde je splnění braggovské podmínky pro odraz SXR záření zajištěno střídáním vrstev prvků s nízkým a vysokým protonovým číslem, s periodou srovnatelnou s vlnovou délkou laseru. Pro laser na neonu podobných iontech zinku (Zn^{20+}) s vlnovou délkou 21,2 nm se příkladně používají multivrstvy křemíku a molybdenu [20]. U výše zmíněného CDL systému s neonu podobnými ionty argonu generujícího na vlnové délce 46,9 nm je zase nejlepší volbou struktura z vrstev křemíku a skandia [21].

Významný milník ve výzkumu hustého horkého plazmatu představoval příchod laserů na volných elektronech (FEL – *Free Electron Laser*). Jde o zařízení pracující na zcela odlišném principu než všechny výše uvedené druhy, koherentní záření zde totiž vzniká při pohybu urychlených nabitých částic v magnetickém poli periodicky se měnícím v prostoru. Schéma SXR/RTG laserů založených na tomto principu prakticky bez výjimky sestává ze čtyř základních bloků:

- zdroj volných elektronů (tzv. injektor), buď pulzní (založené na vnějším fotoefektu při interakci vysokorepetičních UV laserů s metalickou fotokatodou), anebo kontinuální využívající termoemisní elektronová děla

- lineární řetězec radiofrekvenčních kavit mnohdy konstruovaných ze supravodivých materiálů (LINAC – *LINear ACcelerator*), kde dochází k urychlování elektronů na velmi vysoké energie (>10 GeV)
- undulátor – soustava magnetických nástavců vytvářejících periodické magnetické pole
- interakční komory a fokusační optika, jejíž vrchol dnes představuje adaptivní Kirkpatrick-Baezova optika v podobě dvou na sebe kolmých válcových zrcadel se spojitě proměnlivým zakřivením

Shluk urychlených elektronů (*electron bunch*) je po vstupu do undulátoru nucen oscilovat, přičemž dochází ke generaci tzv. synchrotronového záření. Nejkratší vlnové délky jsou generovány ve chvíli největšího okamžitého zrychlení elektronů tečně ke směru jejich pohybu, který je zároveň rovnoběžný s osou undulátoru. Vzniklé elektromagnetické záření v superpozici s magnetickým polem undulátoru vytváří tzv. ponderomotivní potenciál, jehož působením dochází k redistribuci elektronové hustoty uvnitř původního elektronového oblaku, který se rozpadá na množství vzájemně separovaných elektronových mikrozhustků (*microbunches*). Ty i nadále oscilují uvnitř magnetického pole undulátoru a výsledné záření se (na rozdíl od synchrotronového) díky vzrůstající míře uspořádanosti mikrozhustků stává koherentní, především v podélném směru (tzv. časová koherence). Charakteristická pro FEL impulzy je i ultrakrátká doba jejich trvání (x10 fs – x100 fs) a vysoká kvalita svazku, především pokud jde o příčnou koherenci (tzv. prostorová).

Více informací o těchto zdrojích tzv. čtvrté generace je lze nalézt v knihách [22-24] a článcích [25-28]. První FEL pracovaly v infračerveném spektrálním oboru a využívaly rezonátorů se zcadly [25,26]; krátkovlnné FEL se musí obejít bez rezonátoru a fungují na principu SASE – *Self-Amplified Spontaneous Emission* [22-24,27,28].

Plazma vytvořené objemovým ohřevem (*volumetric heating*) lehkých (Si) a těžších (Cr, Ag) prvků pomocí fokusovaného svazku argonového CDL bylo spektroskopickými metodami diagnostikováno v práci Berilla a kol. [29]. Technikami OES bylo zjištěno, že jde sice o velmi husté plazma, které však rychle rekombinuje, a OE spektra, která lze navíc v důsledku extrémní opacity hustého plazmatu pro viditelné záření snímat jen z povrchové vrstvy expandujícího ablačního výtrysku, tak obsahují buď čáry neutrálních atomů, nebo atomárních iontů

s nábojovým číslem obvykle +1. Vyšší nábojová čísla ukazuje až EUV/SXR spektroskopie ([30], kapitola 3.2), protože záření kratších vlnových délek snáze proniká do volného prostoru i z hlubších vrstev hustého plazmatu, a můžeme tak s její sondovat i vnitřek ablačního výtrysku.

V OE spektrech, která Berrill a kol. [29] zaznamenali pro plazma produkované pomocí EUV záření s intenzitou 10^{13} W/cm^2, je nicméně abundance atomárních iontů i při této nepříliš vysoké intenzitě překvapivě vysoká, zejména pokud je porovnáme s pozdějšími výsledky OE spekter emitovaných z plazmatu vytvořeného fokusovaným svazkem SXR laseru na volných elektronech na výrazně vyšších intenzitách (> 10^{15} W/cm^2). Přes řádově vyšší intenzity dopadajícího záření zde totiž často identifikujeme také pouze čáry neutrálních atomů či jednomocných iontů (viz kapitola 3.3). To může být výsledkem působení dvou faktorů:

- EUV záření kapilárního laseru má delší vlnovou délku a je látkou absorbováno silněji než SXR FEL záření FEL.
- Impulzy záření CDL jsou mnohem delší (1 ns) než impulzy FEL (~x10 fs), impulzy CDL tedy mohou interagovat s ablačním výtryskem a zvyšovat tak stupeň ionizace jeho povrchové vrstvy, z níž snímáme OE spektrum. Impulz FEL je naproti tomu tak krátký, že celý projde povrchem terče dříve, než začne jím ionizovaná a excitovaná pevná látka expandovat a vytvářet byť i jen ranou fázi ablačního výtrysku. Říkáme, že ultrakrátké impulzy FEL záření interagují s terčem izochoricky.

Ačkoli CDL umožnily provádět experimenty s objemovým ohřevem v laboratorních podmínkách, první interakční studie, např. [31,32], využívaly hlavně již zmíněné EUV/SXR lasery s volnými elektrony, což jsou sice velká a nákladná zařízení, poskytují však oproti plazmovým laserům pro tento účel určité výhody. Obecně jsou krátkovlnné lasery pro generaci velmi hustého plazmatu vhodné z následujících důvodů:

- Absorpce záření probíhá atomární fotoefektem, a je tedy určena prvkovým složením látky terče a jeho hustotou; až při vysokých intenzitách se v plazmatu začíná uplatňovat další mechanizmus – jev inverzní k brzdnému záření (*inverse bremsstrahlung*). Zde je možno uplatnit klíčovou vlastnost FEL zdrojů – poměrně širokou a kontinuální proladitelnost generovaných

vlnových délek. Je tedy možno naladit se přesně na absorpční hranu a deponovat energii v terči selektivně vzhledem k určitému prvku a k ionizaci z vybraného elektronického stavu.

- Výše uvedený princip absorpce, který je zcela odlišný od interakce ultrafialového (UV – *UltraViolet*), viditelného (Vis – *Visible*) a blízkého infračerveného (NIR – *Near InfraRed*) záření s hmotou, má za následek absenci nelineárně optických jevů, jež při vysokých intenzitách dlouhovlnnějších laserů komplikují depozici energie v terči. Při interakci krátkovlnných laserů s hmotou sice nelinární efekty pozorujeme také, obecně jsou však způsobeny zcela odlišnými mechanizmy a objevují se při řádově vyšších intenzitách.
- Je známo, že elektromagnetické záření nemůže pronikat plazmatem, jehož elektronová hustota je vyšší než kritická hustota pro danou vlnovou délku záření. Na vlnových délkách, na nichž je generováno EUV/SXR/RTG laserové záření, se kritické hustoty blíží hustotě elektronů v pevné látce. Za žádných podmínek se tedy nevytvoří kritická plocha, na níž by se elektromagnetické vlny takových laserů odráželo zpět, a bránilo tak jejich pronikání do vznikajícího plazmatu.

Kombinace těchto specifických rysů interakce krátkovlnných laserů s hmotou z nich činí ideální nástroje ke generaci velmi hustého (až s hustotou pevné fáze) ale relativně chladného plazmatu (elektronové teploty v něm typicky nabývají hodnot několika eV), které je nazýváno prohřátou hustou hmotou a označováno zkratkou WDM (*Warm Dense Matter*) [33-35]. Rovnoměrný objemový ohřev řeší také problém velkých gradientů hustoty a teploty plazmatu, který zatěžuje výzkum interakce svazků dlouhovlnnějších, tj. UV/Vis/NIR laserů.

K tomu pro FEL záření přistupuje již zmíněná výhoda, že jimi indukovaný ohřev látky je nejen volumetrický, ale i izochorický. Zajímavé je srovnání interakce a jejích důsledků pro ultrakrátké FEL impulzy a krátké impulzy z plazmových zdrojů, viz např. [36]. Popis účinku delších impulzů je složitější (viz například rané hydrodynamické simulace [37]), v takovém případě je však možné využít jeden nedělený impulz k experimentům typu *pump-and-probe* [38], kdy čelo impulzu vytváří plazma, jež pak druhá část téhož impulzu sonduje. Tím odpadá nutnost dělit a časovat impulzy ve složitých uspořádáních (*autocorrelator, split-and-delay unit*),

kde se ve zpožďovacích ramenech několikanásobnými odrazy tratí značná část energie svazku. Dělení a zpožďování FEL impulzů také vnáší do *pump-and-probe* experimentů časovou a polohovou neurčitost. I tu lze nicméně eliminovat vhodně navrženým uspořádáním interakčního experimentu [39], kde je tato neurčitost využitím dvou nezávislých svazků z principu potlačena. Vidíme tedy, že i když v současnosti dominují interakčnímu výzkumu FEL zdroje, mohou pro určitá měření poskytnout podstatné výhody plazmové lasery generující delší impulzy.

Pronikavost krátkovlnného laserového záření hustým plazmatem využívají i další spektroskopické techniky sledující rozptýlenou čáru laseru a její nejbližší okolí, především spektroskopie tzv. Thomsonova rozptylu [40].

Výše bylo ukázáno, že již při raném studiu interakce krátkovlnného laserového záření s hmotou byla využita řada spektroskopických technik sledujících fotony různých energií vyzářené z vytvořeného plazmatu. Před zahájením předkládaného doktorandského výzkumu bylo publikováno jen několik prací, věnvaných hmotově spektrometrickým měřením nabitých částic emitovaných z plazmatu vytvořeného EUV/SXR laserem. Hmotový spektrometr s dobou průletu (TOF – *Time-Of-Flight*) byl připojen jako součást rezidenční diagnostiky ke komoře FELIS (*Free-Electron Laser Interaction with Solids*) [41] napojené na první EUV laser s volnými elektrony poskytující záření o vlnové délce kratší než 100 nm – TTF1 FEL (*TESLA Test Facility Free Electron Laser, Phase 1*) v DESY, Hamburk, SRN [41]. Později stejný TOF spektrometr sledoval iontovou emisi z různých kovů a jejich deuteridů [42] ozářených fokusovaným SXR svazkem ze zdroje FLASH (*Free electron LASer in Hamburg* [30]). V této práci byla iontová emise využita k určení polohy fokusu FEL svazku a povrchu terče. Metoda je založena na předpokladu, že nejvyšších nábojových čísel a abundancí iontů pozorujeme, když intenzita dosáhne maxima.

Z řady již uvedených skutečností plyne, že EUV/SXR/RTG lasery produkují svazky, na něž musíme pohlížet nejen jako na svazky laserové, ale též jako na svazky ionizujícího záření. Tradičně se ke zviditelnění takového záření užívají různé scintilační materiály.

Nyní se vraťme k raným, ale důležitým experimentům s SXR koherentními zdroji využívajícími plazmatu generovaného velkými optickými laserovými systémy. Zinkový laser [13], který jsme stručně popsali výše, posloužil k jednomu z prvních interakčních experimentů s pevnou látkou [43]. Cílem však nebylo pomocí soustředěného svazku generovat vysokoparametrové plazma, ale indukovat

radioluminiscenci z iontových krystalů, jejichž chování bylo v tomto směru dříve studováno pomocí synchrotronového záření. K tomu nebylo třeba svazek fokusovat. Lisovaný prášek jodidu cesného (CsI) byl ozářen zinkovým QSS laserem (vlnová délka 21,2 nm; energie fotonu 58,5 eV) se semikavitou, který emitoval $6x10^{12}$ fotonů v impulzu trvajícím asi 80 ps, a bez ní (v přibližně stejně dlouhém impulzu) bylo vyzářeno jen $4x10^{10}$ fotonů. Průměr stopy, kterou svazek zaujímá na povrchu vzorku, byl v obou případech stejný - asi 300 μm, což znamená, že při použití laseru s polokavitou byl vzorek ozářen 150 krát vyšší dávkou, čímž bylo dosaženo 150 krát vyšší intenzity, která tak dosáhla úrovně 10^9 W/cm^2. Navzdory tomu byla intenzita ultrafialové radioluminiscence v tomto případě jen o polovinu vyšší, než tomu bylo při ozáření SXR laserem bez polokavity. Autoři článku [43] vysvětlují nízký výtěžek radioluminiscence při vysoké intenzitě jejího buzení nezářivou rekombinací mezi různými klastry korelovaných elektronových excitací, jejichž zářivá rekombinace uvnitř klastru se projevuje pozorovanou luminiscencí. V referativním článku [44] je předložena hypotéza, že málo intenzivní radioluminiscenční signál pozorovaný při silném buzení SXR laserem se semikavitou je důsledkem hroucení (měknutí) mřížky CsI. Pokud bychom předpokládali, že ozáření bez polokavity probíhalo pod ablačním prahem a s polokavitou nad ním, byl by dramatický rozdíl ve výtěžku procesů probíhajících v krystalové mřížce CsI právě při těchto intenzitách pochopitelný. Polohy prahů rentgenové ablace (provedené ovšem ve všech zde citovaných případech s podstatně vyššími energiemi fotonů) jiných materiálů i konvenční laserové ablace jodidu cesného [44] takovou interpretaci předem nevylučují.

Rozhodnout o tom, zda pokles radioluminiscenčního výtěžku je způsoben jen vysokou hustotou excitace a ionizace ústící v řadu konkurenčních, rekombinačních a zhášecích procesů, nebo zda dochází k narušení krystalové mřížky luminiscenčního materiálu, umožňuje FEL záření. S ním je možno jednak proměřit výtěžky radioluminiscence v širokém rozsahu intenzit, ale i určit prahovou hustotu energie, při níž začínají probíhat nevratné změny mříže. S EUV impulzy generovanými TTF1 FEL zařízením byly proměřeny výtěžky radioluminescence [45] a prahy poškození [32] yttrium-hlinitého granátu dotovaného cerem (Ce:$Y_3Al_5O_{12}$ či Ce:YAG), patrně nejrozšířenějšího anorganického scintilátoru. V této dizertační práci se pokusíme řešit tento problém na kratších vlnových délkách.

Nevratné změny vyvolané fokusovaným EUV/SXR/RTG zářením mohou být efektivně zkoumány různými spektroskopickými metodami s prostorovým

rozlišením. Velmi účinným nástrojem je Ramanova spektroskopie s viditelným laserovým mikrosvazkem. V amorfním uhlíku (a-C) exponovaným krátkovlnnými lasery například ukazuje zajímavý rozdíl v účinku krátkých a ultrakrátkých impulzů. Nanosekundové EUV CDL impulzy erodují a-C aniž by měnily poměr sp^3/sp^2 uhlíkových atomů [46]. Naopak ultrakrátké impulzy FEL záření nebo vysokých harmonických (HHG – *High order Harmonics Generation*) způsobují grafitizaci materiálu vedoucí k jeho expanzi. O tom, jak ji lze prokázat Ramanovou spektroskopií pojednám ve třetí kapitole této práce.

2. Cíle

V návaznosti na dílčí směry výzkumu definované v *Úvodu* byly zformulovány níže uvedené cíle:

1) Pomocí absorpčně-transmisních měření charakterizovat možné nelineární optické jevy ovlivňující absorpci laserového záření při interakcí s pevnou látkou.
2) S využitím metod krátkovlnné emisní spektroskopie diagnostikovat WDM laserové plazma a napomoci tak k osvětlení jevu snížení ionizačního potenciálu v plazmatu.
3) Ověřit možnost studia WDM laserového plazmatu i za pomoci optické emisní spektroskopie coby zdroje informací o procesech v plazmatu s podkritickou hustotou pro UV/Vis/NIR záření.
4) Prostudovat aspekty a možnosti využití emise nabitých částic při interakci laserového záření s pevnou látkou s využitím metody hmotové spektroskopie.
5) Za pomoci metod optické emisní spektroskopie prozkoumat radioluminiscenční odezvu vhodných anorganických scintilátorů na ozáření krátkovlnnými FEL svazky na vysokých intenzitách.
6) Analýzou ramanovských spekter z povrchu materiálu vystaveného intenzivnímu krátkovlnnému laserovému záření stanovit charakter nevratných chemických změn a pokusit se o jejich kvantitativní interpretaci pomocí vhodného matematického modelu.

Dosažení těchto cílů by mělo přispět k bližšímu pochopení základních procesů probíhajících při interakci krátkovlnných ultrakrátkých laserových impulzů s hmotou pevné fáze.

3. Interakce krátkovlnných svazků s pevnou fází

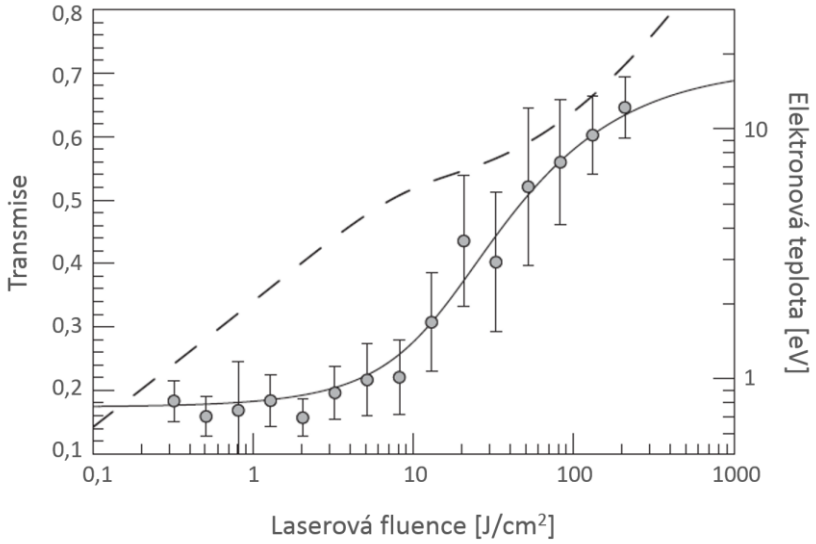
3.1 Absorpčně-transmisní měření se svazky SXR/RTG laserů

Jedna z nejstarších spektroskopických technik spočívá ve stanovení pohltivosti záření (jeho absorbance) daným prostředím na jedné určité vlnové délce (fotometrie, kolorimetrie) nebo přes daný interval vlnových délek (spektrofotometrie). Lineární absorpci záření popisuje Lambertův-Beerův zákon. Pro nízké a střední intenzity záření se jeho absorpce řídí většinou tímto zákonem. Při vysokých intenzitách (především pulzního laserového záření) se však začínají uplatňovat nelineární optické jevy, které způsobují různé odchylky od Lambertova-Beerova zákona. Ty jsou v podstatě dvojího druhu. Vícefotonová absorpce (*multiphoton absorption*) způsobuje nárůst pohltivosti s rostoucí intenzitou dopadajícího záření. Charakter absorpce lze určit z tvaru její závislosti na intenzitě. Pro dvoufotonovou absorpci je pohltivost úměrná druhé mocnině intenzity, pro třífotonovou je tato závislost kubická, atd. Dvoufotonovou absorpci SXR FEL záření v grafitu nedávno demonstrovali kolegové na zařízení FERMI v Terstu [47]. K poklesu specifické pohltivosti při růstu intenzity naopak dochází při saturované absorpci resp. indukované transparenci. Zatímco multifotonová absorpce má především analytické využití a významná je také v atomové, molekulární a chemické fyzice a kvantové optice (viz např. [48]), procesy vedoucí ke snížení absorpce hrají důležitou roli v laserové fyzice (saturovatelné absorbéry, pasívní Q klíčování, optické izolátory, apod. - viz např. [49]).

V této kapitole představíme zvláštní druh snížení pohltivosti při vysokých intenzitách měkkého rentgenového záření dopadajícího na tenkou hliníkovou fólii z laseru na volných elektronech FLASH [P1]. Svazek laseru naladěného na 13,5 nm (92 eV) byl fokusován na povrch hliníkové fólie pomocí mimoosého parabolického zrcadla s mnohovrstvým pokrytím (*off-axis parabola with multi-layer Si/Mo coating*). Ablační otisky svazku do PMMA – poly(metyl-metakrylátu) nám umožnily nastavit povrch terče do fokusu svazku a určit tam jeho efektivní plochu [50]. Pomocí plynových a pevnolátkových atenuátorů byla měněna energie svazku a při jeho stabilní geometrii také intenzita dopadajícího záření. Energii impulzu trvajícího 15 fs měřil u zdroje plynový fotoionizační detektor (GMD – *gas monitor detector*) a

za terčem křemíková fotodioda. V tomto uspořádání pak byla proměřena závislost transmise hliníkové fólie na intenzitě až do 10^{16} W/cm^2.

Na obr. 1 vidíme, že závislost transmitance na plošné hustotě energie je konstantní (pohybuje se mezi 0,15-0,2) až do 10 J/cm^2. Když se intenzita dále zvyšuje, roste i transmise hliníku a to až na hodnotu 0,65. Mechanismus sledovaného děje je následující: fotony o energii 92 eV ionizují elektron ze slupky atomu hliníku, zbytková elektronová konfigurace je jádrem vázána silněji, ionizační energie se pro další takové elektrony zvýší a 92 eV foton je již ze slupky L vyrazit nemůže. Ztrácí tedy hlavní možnost, jak s hliníkem interagovat a terčem prolétají, transmise materiálu se na dané vlnové délce zvyšuje. Šlo o vůbec první pozorování tohoto jevu s měkkým rentgenovým zářením.



Obr. 1: Závislost transmise hliníkové folie o tloušťce 53 nm na fluenci dopadajícího laserového záření s energií fotonů 92 eV [P1]. Experimentální body jsou doplněné 1σ chybovými úsečkami (dané především fluktuací energie laserového systému FLASH výstřel od výstřelu). Čárkovaná čára znázorňuje průběh elektronové teploty ve valenčním pásu po průchodu laserového impulzu, avšak před jejím dalším zvyšováním při Augerově rekombinaci během zaplňování vakancí v L slupce.

Význam tohoto pozorování je značný, a to nejen teoretický (viz objasnění mechanizmu popsané výše), ale i praktický. Prodloužení atenuační délky FEL záření v důsledku intenzitně závislého nárůstu transmise totiž zesiluje efekt objemového ohřevu, jak jsme jej popsali v úvodu. Dosažení velmi vysokých intenzit na povrchu terče vede k jeho hlubšímu rovnoměrnému prohřátí, což přispívá k řešení problému gradientů elektronové hustoty a teploty - tento problém komplikuje interpretaci téměř

všech interakčních experimentů provedených na delších vlnových délkách, tj. v UV/Vis/NIR spektrálních oborech, viz např. [51-55].

V práci [P2] je popsán jev saturované absorpce pozorovaný pro elektrony K slupek a RTG záření laseru s volnými elektrony LCLS (*Linac Coherent Light Source* [56]), čímž byla existence tohoto jevu prokázána i pro fotony s vyšší energií.

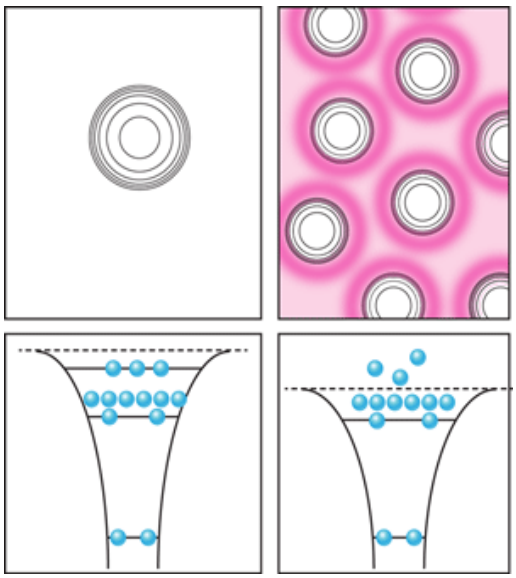
Správná interpretace výsledků byla v obou případech podmíněna detailní znalostí příčného rozložení intenzity v laserovém impulzu. Výsledný signál je totiž integrálem příspěvků od všech intenzit, které jsou v příčném profilu zastoupeny obecně různou měrou. Pomocí ablačních imprintů v PMMA na různých úrovních atenuace laserového svazku jsme proto rekonstruovali příčný profil svazku (který se výrazně odlišoval gaussovského profilu), což vedlo k výraznému zpřesnění dosažených výsledků.

V obou zmíněných spektrálních oborech byl tento druh nelineárního chování FEL svazku v silně ozářené látce nalezen a zkoumán i jinými skupinami, viz např. [57-59]. Jejich výsledky se vzájemně potvrzují s našimi nálezy.

3.2 Studium hustého plazmatu pomocí krátkovlnné emisní spektroskopie

K objemové spektroskopické diagnostice velmi hustého plazmatu nižších (WDM) a vyšších (HDM – *Hot Dense Matter*) elektronových teplot jsme využívali jak jeho čárovou a pásovou emisi v extrémním ultrafialovém a měkkém rentgenovém spektrálním oboru, tak rentgenfluorescenční (XRF - *X-Ray Fluorescence*) záření indukované FEL zářením. V této kapitole se soustředíme na výsledky dosažené s RTG FEL svazkem systému LCLS. Pomocí EUV/SXR/RTG spektrometrie jsme se zde pokusili přispět k osvětlení mechanismu odpovědného za snižování ionizačního potenciálu v prostředí velmi hustého plazmatu oproti případu izolovaného iontu ve vakuu.

Horké husté plazma nejenže vystupuje jako aktivní prostředí plazmových krátkovlnných laserů, ale hraje také klíčovou roli v astrofyzice a inerciální termojaderné syntéze (ICF – *Inertial Confinement Fusion*). Jako takové bylo v minulosti předmětem řady pokusů o co nejpřesnější formální vystižení a matematický popis pozorovaných jevů. Jedním z nich je právě výše uvedené snižování ionizačního potenciálu, v současné literatuře označovaný jako IPD (*Ionization-Potential Depression*), ve zjednodušené formě je tento efekt ilustrován na obr. 2. Již od šedesátých let minulého století byl nejvíce využívaným teoretickým přístupem k popisu IPD model Stewartův-Pyattův [60] založený na Thomasově-Fermiho teorii. Starší, až dosud méně často používaný, je Eckerův-Kröllův model [61], který v porovnání obou modelů předpovídá větší snížení potenciálu.

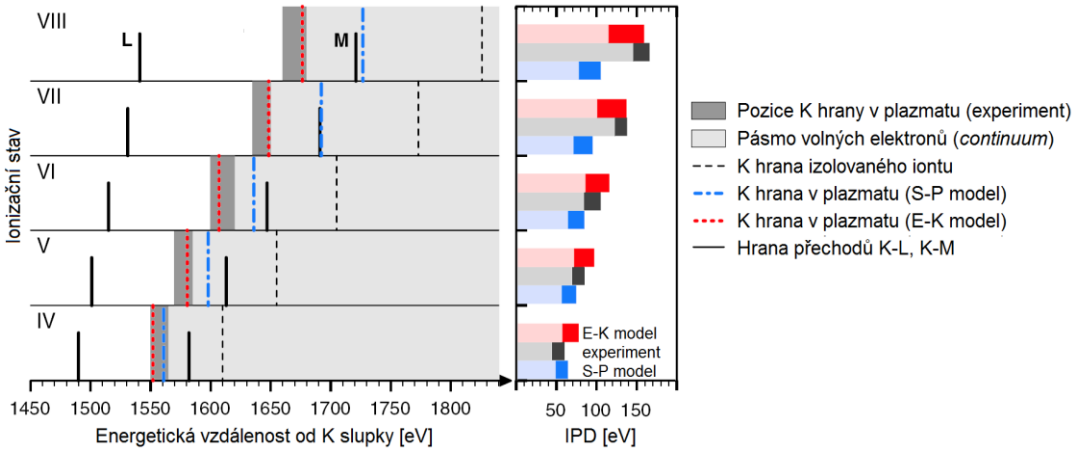


Obr. 2: Zjednodušené schéma snížení ionizačního potenciálu v plazmatu [62]. Vlevo nahoře vidíme znázornění izolovaného iontu ve vakuu se soustřednými kruhy, které představují energetické hladiny elektronového obalu iontu. Z diagramu těchto hladin (vlevo dole) je zřejmé, že všechny elektrony (modré kuličky) jsou v iontu vázány, neboť jejich energie je pod ionizačním limitem, který představuje přerušovaná čára. Vpravo nahoře jsou schematicky znázorněny ionty v hustém plazmatu. Menší vzdálenosti mezi soustřednými kroužky ilustrují pokles ionizačního potenciálu v důsledku působení pole okolního plazmatu. Tmavě fialově je vyznačena tzv. iontová sféra (*ion sphere*), tj. oblast, v níž je vazebná energie iontu zcela kompenzována okolními poli. Diagram vpravo dole zachycuje situaci, kdy v plazmatu klesne hodnota ionizační energie natolik, že se elektrony původně slabě vázané ve vnějších slupkách uvolní. Dochází k tzv. ionizaci tlakem (*pressure ionization*).

V práci [P3] je IPD vyšetřován RTG fluorescenční spektroskopií plazmatu vytvořeného v hliníkovém terči fokusovaným svazkem laseru s volnými elektrony LCLS. Již jsme zmínili, že důležitou vlastností plazmatu vytvořeného objemovým ohřevem pevné látky RTG laserovým zářením je rovnoměrné rozdělení elektronové hustoty a teploty v celém jeho objemu. V kombinaci s ultrakrátkými impulzy LCLS (100 fs), a tedy izochorickým ohřevem, není interakce komplikována ani hydrodynamickou expanzí plazmatu. Spektra rentgenového záření emitovaného z plazmatu vytvořeného na LCLS lze tedy bezpečně interpretovat.

Záření RTG laseru s volnými elektrony zde slouží nejen k vytvoření homogenního vzorku hustého horkého plazmatu, ale i k buzení RTG fluorescence poskytující důležité informace o stavu vzorku. Změnu ionizačního potenciálu lze totiž určit ze spektrálního posunu emisních čar vyzářených v důsledku propadu

elektronu z oblasti vně iontové sféry (*continuum*) do vakance vytvořené v K slupce hliníku fotoionizací indukovanou zářením LCLS – viz obr. 3.



Obr. 3: Vlevo: posun K hrany uvnitř hustého hliníkového plazmatu vůči její pozici pro případ izolovaného iontu, odvozený z emisních spekter čerpaných laserovým svazkem LCLS pro prvních pět ionizačních stavů Al^{4+} - Al^{8+} (za pokojové teploty uvnitř pevné fáze se všechny tři valenční elektrony nacházejí vně iontové sféry, na atomy hliníku tak lze nahlížet jako na trojnásobně ionizované). Vpravo: porovnání experimentálně zjištěných hodnot poklesu ionizačního potenciálu s hodnotami předpovězenými pomocí obou použitých modelů (tmavé části sloupců odpovídají maximálním naměřeným hodnotám poklesu) [P3].

Výpočty Orlanda Ciricosty a jeho kolegů z *University of Oxford*, zaměřené na počítačovou simulaci naměřených fluorescenčních spekter, překvapivě ukázaly, že pokles ionizačního potenciálu je v daném případě dokonale vystižen dosud poněkud podceňovaným Eckerovým-Kröllovým modelem [P3].

Tím vyvstala potřeba pomocí tohoto modelu přehodnotit výsledky získané pro astrofyzikální a fúzní plazma s využitím jiných přístupů k popisu IPD a dále podrobně zkoumat a testovat jak zmíněné dva modely, tak k nim alternativní přístupy. Sami jsme ve výzkumu IPD pokračovali proměřením řady prvků a jejich sloučenin za daných podmínek [63], čímž jsme rozšířili soubor experimentálních poznatků dostupných teoretikům k dosažení co nejvěrnějšího popisu IPD.

Samotný interakční experiment byl začátkem února 2012 popsán v *Nature* [P4]. Zasazené do širšího kontextu byly získané informace později zprostředkovány českým a slovenským čtenářům v *Československém časopise pro fyziku* [64].[1]

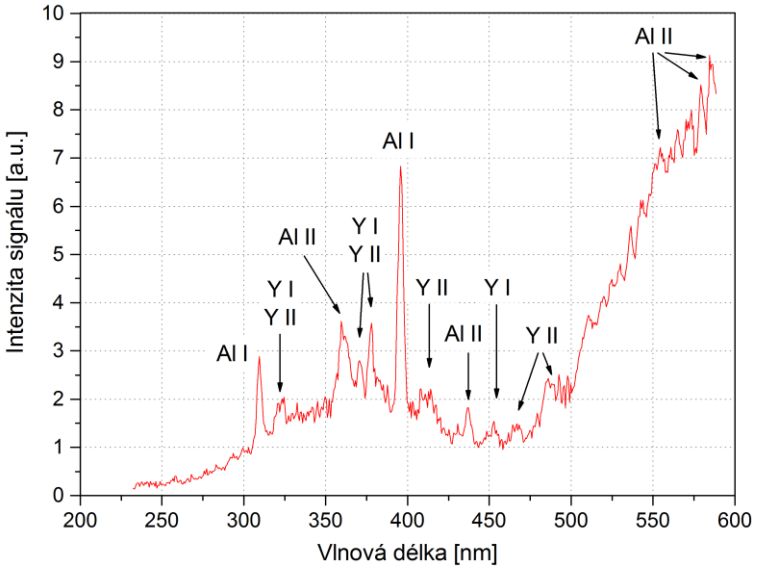
[1] O kvalitě dosažených výsledků svědčí i práce Donalda Umstadtera, vynikajícího odborníka na laserové plazma a interakci laserového záření s hmotou, který je považuje za významný příspěvek k pochopení chování iontů v hustém plazmatu [62].

3.3 Může být WDM diagnostikována OES a podobnými technikami?

Optická emisní spektroskopie (OES) v oborech UV/Vis/NIR je jednou z nejlépe zavedených technik diagnostiky plazmatu je. Podrobně o ní pojednává celá řada monografií [65-68]. Nicméně, z toho, co jsme v úvodu uvedli o interakci krátkovlnných laserů s hmotou produkující WDM plazma a o závislosti jeho opacity pro elektromagnetické záření na jeho vlnové délce, plyne, že OES nám poskytuje informace o velmi tenké povrchové vrstvě terče a posléze ablačního výtrysku, kde elektronová hustota ještě (nebo už) nedosahuje kritické hodnoty pro UV/Vis/NIR záření.

I když jistě musíme mít na zřeteli výše uvedené omezení, chceme v této kapitole doložit, že OES může poskytnout zajímavé výsledky a doplnit obraz, který nám o WDM plazmatu vytvořeném krátkovlnnými lasery podává EUV/SXR/RTG spektroskopie (viz předcházející kapitola 3.2).

Ilustrativní OE spektrum je uvedeno na obr. 4. Jde o signál získaný z interakce SXR laserového svazku ostře fokusovaného na povrch scintilačního materiálu Ce:YAG. Vidíme zde jednak obvyklé luminiscenční spektrum tohoto krystalu (široké pásmo zářivých 5d-4f přechodů uvnitř Ce atomů v oblasti 500-650 nm), ale také emisní čáry plazmatu indukovaného laserovým zářením.



Obr. 4: Optické emisní spektrum sejmuté z povrchu vzorku Ce:$Y_3Al_5O_{12}$ ozářeného svazkem laseru s volnými elektrony FLASH naladěným na vlnovou délku 13,7 nm a soustředěným na povrch terče tak, aby intenzita dopadajícího záření převýšila 10^{15} W/cm^2.

I přes velmi vysokou intenzitu záření (>10^{15} W/cm^2) kombinovanou s energií jednotlivých fotonů (90,5 eV), která běžně postačuje pro tvorbu několikanásobně nabitých iontů, dominují spektru emisní čáry neutrálních atomů hliníku a yttria spolu s čarami nejvýše jednomocných iontů (ve spektroskopické notaci značené řeckým číslem I, resp. II).

Usuzujeme, že při takových intenzitách ionizujícího záření se musí vytvářet plazma, kde abundance vícenásobně nabitých iontů rozhodně nebude zanedbatelná. Poměry, které vidíme v OE spektru na obr. 4, jsou důsledkem velmi rychlé rekombinace hustého plazmatu a již několikrát zmíněného faktu, že optické záření k pozorovateli proniká jen z povrchu a tenké podpovrchové vrstvy vytvořeného plazmatu. Tuto tezi potvrzuje srovnání krátkovlnných a dlouhovlnných emisních spekter hliníku FLASH svazkem vyprodukované WDM, které byly publikovány v práci [P5].

3.4 Jaké ionty emituje plazma vytvořené EUV laserem a k čemu nám tato emise může posloužit?

Hmotnostní spektroskopie (MS) nabitých částic emitovaných plazmatem vytvořeným fokusovaným svazkem laseru nám může sloužit ke třem hlavním účelům:

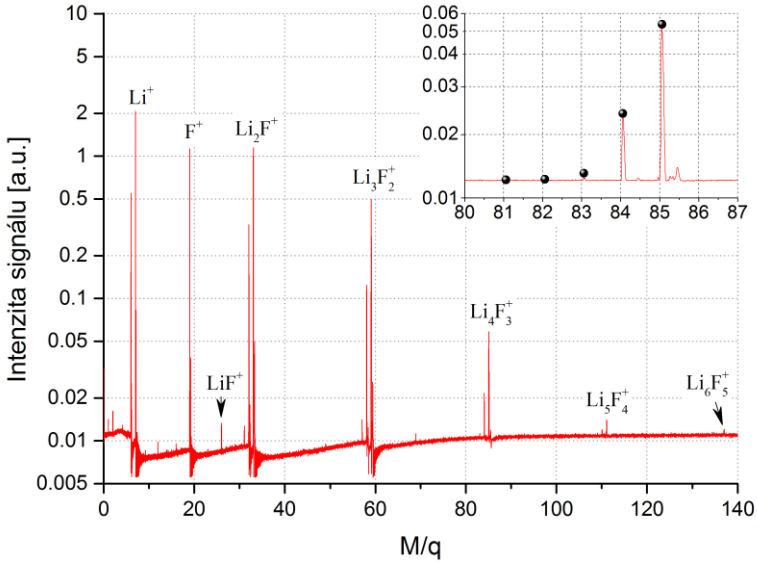
Především poskytuje informace o chemickém složení materiálu ablaovaného [69] nebo desorbovaného [70] laserovým zářením. Na tomto principu je založena řada analytických metod, které jsou široce využívány a patřičně ceněny ve výzkumu i v praxi.[2]

Dále nám umožní stanovení kinetických energií a poměrných zastoupení iontů prvku terče s různými nábojovými čísly a získání základních charakteristik plazmatu, čímž se řadí mezi klasické a dobře zavedené metody diagnostiky plazmatu, viz např. [71,72].

A konečně, plazma vytvářené fokusovaným laserovým svazkem může představovat silný zdroj nabitých částic - elektronů [73], protonů [74], vysoce nabitých iontů [75,76]. Tyto mohou být následně využity k dalšímu urychlování, přičemž metody hmotnostní spektroskopie jsou v takovém případě pro charakterizaci takto generovaných částic nanejvýš vhodné.

Jako příklad užití hmotnostní spektroskopie jsou zde prezentovány výsledky práce [P6] a další, které zatím publikovány nebyly. Plazma je pro tento účel generováno EUV laserem využívajícím kapilární výboj v argonu (46,9 nm), jehož svazek je pomocí zónové destičky fokusován do submikronové oblasti na povrchu zkoumaného materiálu. Ionty emitované z ablaovaného materiálu procházejí kruhovou aperturou ve středu fokusačního prvku do TOF hmotového spektrometru doplněného iontovým reflektronem. Ten kompenzuje rozšíření spektrálních čar vlivem rozdílných kinetických energií iontů shodného typu. Vzorové spektrum získané ze vzorku fluoridu lithného (LiF) je uvedeno v obr. 5.

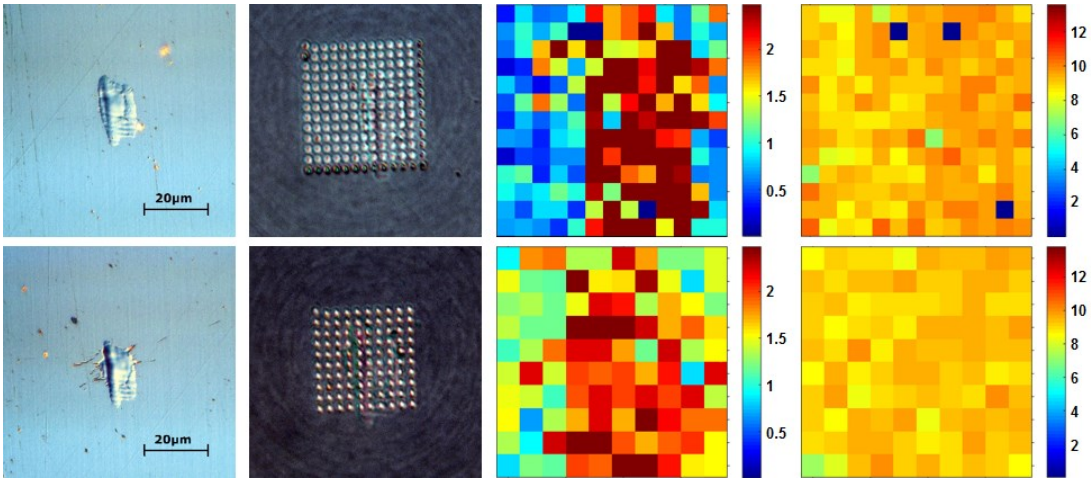
[2] John Fenn a Koichi Tanaka coby objevitelé techniky MALDI MS (*Matrix-Assisted Laser Desorption/Ionization Mass Spectrometry*) [77] za ni v roce 2002 získali Nobelovou cenou za chemii.



Obr. 5: Hmotové spektrum kationtů z ablačního výtrysku generovaného EUV kapilárním argonovým laserem fokusovaným na vzorek LiF [P6]. Detail ilustruje dosažené rozlišení a slouží zde k ověření linearity měřicí aparatury pro klastr $Li_4F_3^+$ – černé body odpovídají intenzitám simulovaným pomocí jednoduchého modelu založeného na přírodním zastoupení izotopů lithia s M/q=6,015 a M/q=7,016

Analýza tohoto spektra potvrzuje některé ze specifik interakce EUV záření s látkou rozebrané v *Úvodu*. Vysoký odstup signál-šum dokladuje efektivní proces separace iontů v analyzátoru. Neizochorická interakce relativně dlouhého EUV impulzu (1,5 ns) dále vede k účinné ionizaci i pro nízké energie v impulzu (po započtení odrazivosti všech zrcadel a účinnosti zonální destičky dopadá na povrch vzorku cca 500 nJ/impulz). Přítomnost molekulárních klastrů (typu $Li_nF_{n-1}^+$) ukazuje na převahu efektu fotoionizace nad fotodisociací.

Možnosti metody jsou dále ukázány na obr. 6. Jde o 2D hmotnostně-spektrální mapu povrchu krystalu wolframanu olovnatého ($PbWO_4$), který byl již dříve vystaven fokusovanému svazku laserového systému LCLS s energií fotonů 800 eV. Vzniklé ablační krátery byly zkoumány s cílem stanovit možné změny v chemickém složení, resp. v zastoupení jednotlivých prvků po ozáření energetickými fotony laserového impulzu LCLS.



a) b) c) d)

Obr. 6: a) mikroskopické snímky ablačních kráterů v $PbWO_4$ vytvořené laserovým svazkem LCLS; b) studované plochy překryté maticí ablačních kráterů EUV hmotnostního spektrometru (obojí s krokem 3 µm); c) mapa intenzit hmotnostně-spektrální čáry wolframu (M/q=183.951) a d) mapa intenzit hmotnostně-spektrální čáry olova (M/q=207.977).

Zatímco intenzita signálu odpovídajícího iontům olova (obr. 6d) se ve sledované oblasti prakticky nemění, ve spektrálních mapách na obr. 6c lze snadno identifikovat vzrůstající koncentraci wolframu v místech poškozených laserovými impulzy z LCLS. Lze tedy usuzovat na vysokou těkavost olovnatých produktů takové ablace, zatímco fragmenty obsahující wolfram zůstávají v ozářeném materiálu.

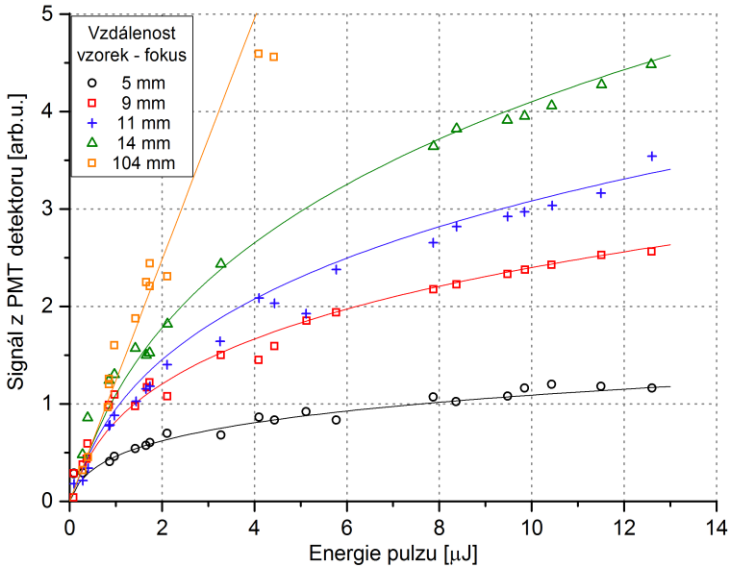
Z uvedených příkladů je zřejmý vysoký potenciál využití hmotové spektroskopie plazmatu indukovaného EUV zářením. Efektivní průběh ionizace ablačního výtrysku spolu s vysokým prostorovým rozlišením umožňují precizní mapování složení povrchových vrstev téměř libovolného materiálu. Díky krátké atenuační délce EUV záření v látce dochází k odběru minimálního objemu ze zkoumaného vzorku, který se povedlo snížit až na úroveň desítek zeptolitrů (1 zl = 10^{-21} l). Další výhody EUV TOF varianty hmotnostní spektroskopie včetně srovnání s dalšími typy MS, jakož i ukázka jejího využití jako 3D mikroskopu jsou součástí přiložené práce [P6].

3.5 Odezva anorganických scintilátorů na ozáření FEL impulzy

Scintilátory, tedy materiály přeměňující neviditelné ionizující záření na viditelné, patří k nejstarším nástrojům využívaným pro indikaci a detekci energetického záření. Již v devatenáctém století jimi byly sledovány katodové (svazky urychlených elektronů) a kanálové (svazky energetických iontů) paprsky [77,78]. Po objevu radioaktivního záření se začátkem dvacátého století stal spintariskop [79,80] spolu s elektroskopem a fotografickou deskou nezbytným vybavením všech laboratoří, ve kterých se badatelé snažili popsat vlastnosti ionizujícího záření a proniknout k podstatě radioaktivních přeměn spojených s jeho emisí.

Již v rané fázi vývoje krátkovlnných laserů se anorganické scintilátory využívaly ke zviditetnění svazku a k získání informací o rozložení intenzity záření v něm. Záhy se zjistilo, že jejich užití je komplikováno nepříznivými faktory, které jsou spojeny s hlavním specifickým rysem těchto svazků – jejich velmi vysokou intenzitou záření, především pokud jsou fokusovány.

Předně jde o jev nelineární luminiscenční odezvy, tedy často velmi výraznou (míněno krajně nepříznivou) závislost výtěžku radioluminiscence na intenzitě dopadajícího záření. Ta byla u SXR plazmových laserů kvantitativně popsána a publikována v roce 1997 [43] a u EUV laserů s volnými elektrony roku 2005 [45]. Příkladem může být námi naměřená závislost uvedená na obr. 7, který je součástí práce [P7], kde jsme kvantitativně charakterizovali zmíněnou nelinearitu v krystalu Ce:YAG a navrhli opatření pro minimalizaci jejích negativních důsledků. Krystal Ce:YAG (anorganický, radiačně velmi stabilní, přesto však velmi citlivý scintilátor) se totiž z historických důvodů a díky snadné dostupnosti používá na většině krátkovlnných laserových zařízení.



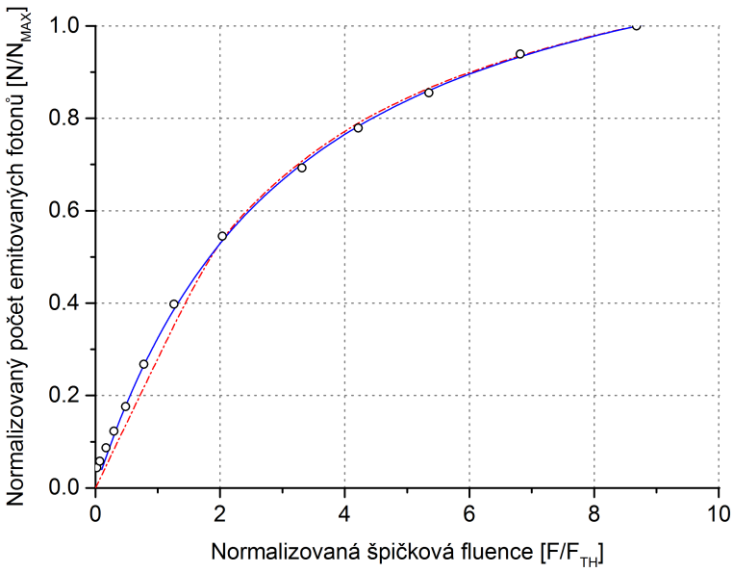
Obr. 7: Závislost radioluminiscenční odezvy anorganického scintilátoru typu Ce:YAG na intenzitě budicího laserového záření (98 nm, FEL systém TTF1), jejíž špičková hodnota byla regulována prostřednictvím změny polohy scintilátoru podél dráhy laserového svazku v blízkosti fokusu. Indukovaná radioluminiscence byla snímána integrálně z celého povrchu scintilátoru fotonásobičem citlivým ve spektrálním rozsahu 490-510 nm. Data jsou proložena modelem uvažujícím nejjednodušší průběh saturace (výstupní signál je přímo úměrný vstupní veličině až do prahové hodnoty, při jejím překročení saturuje a dále zůstává konstantní) a gaussovský profil laserového svazku [P7].

Z grafu lze odečíst jednoznačný trend – čím vyšší je špičková intenzita ve svazku, tím vyšší míru nelinearity pozorujeme. Při interakci laserového impulzu s krystalem Ce:YAG v dostatečné vzdálenosti od fokusu (zde cca >100 mm) se již závislost jeví téměř lineární v širokém rozsahu energií.

Tato nelinearita představuje značný problém především při využití scintilátorů a UV-Vis kamer k sejmutí příčného profilu svazku EUV/SXR/RTG laserů. Jak jsme již uvedli, většina krátkovlnných laserů, které jsou v současnosti v provozu, pracuje na principu zesilování signálu spontánně emitovaného v náhodném místě aktivního prostředí – u plazmových laserů jde o proces ASE (*Amplified Spontaneous Emission*) [17] a u laserů s volnými elektrony mechanizmus SASE (*Self-Amplified Spontaneous Emission*) [24] – což vede k tomu, že profil svazku je málokdy pravidelný. Většinou jde o negaussovské svazky zatížené mnoha nepravidelnostmi, které jsou v anglicky psané literatuře často označovány obtížně přeložitelným, ale výstižným termínem *„randomly spiked“*.

V kombinaci se zmíněnou citlivostí Ce:YAG krystalu se tak do měření profilu svazku může vnést v podstatě neodstranitelná systematická chyba. Pozorovaný profil svazku se totiž „vyhlazuje“ a svazek se jeví jako pravidelný a bez úzkých lokálních maxim (*hot spots*), i když takový není. To pochopitelně nepříznivě ovlivňuje experimentální výsledky i jejich interpretaci.

Jedním z cílů práce [P7] se tak stalo stanovení prahové hodnoty intenzity dopadajícího záření, příp. absorbované dávky, do které lze nelineární jevy zanedbat. Ze tří nezávislých matematických modelů vzniklých v rámci komunity spoluautorů jsme získali překvapivě přesnou shodu v hodnotě saturační absorbované dávky, a sice 32 ± 4 J/cm^3. Srovnání dvou z modelů je uvedeno na obr. 8. Platnost této hodnoty byla prozatím potvrzena v širokém rozsahu energií fotonů (12 eV – 8 keV).



Obr. 8: porovnání dvou matematických simulací nelineární závislosti intenzity radioluminiscence v krystalu Ce:YAG; přestože modely předpokládají odlišný tvar saturační křivky – lineární (červeně), vs. exponenciální (modře), oba lze na experimentální data s úspěchem aplikovat [P7].

Intenzita FEL svazku je navíc často tak vysoká, je scintilátor nevratně poškozen, i když svazek není fokusován. Od počátku výzkumu EUV/SXR FEL zdrojů na to upozorňovali experimentální fyzici, kteří s takovými svazky pracovali. Kladli si logickou otázku: Jak může pozorovaný radioluminiscenční signál věrohodně vypovídat o rozložení intenzity, když se povrch scintilátoru nevratně poškozuje, a to buď fázovými přechody, nebo dokonce ablací?

Práh nevratného poškození Ce:YAG zářením extrémního ultrafialového FEL byl poprvé stanoven na TTF1 FEL a publikován v práci [32]. Na tu jsme navázali se

závěry našeho výzkumu [P8], který stávající poznatky rozšiřuje jednak do měkkého rentgenového oboru, jednak o další materiál – oxid zinečnatý (ZnO) a $PbWO_4$.

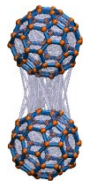
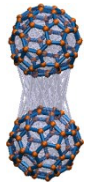
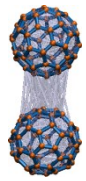
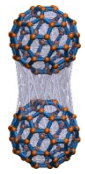
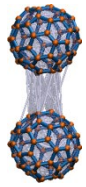
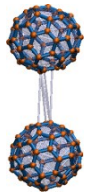
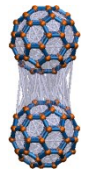
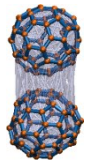
Přínosem tohoto zkoumání bylo zjištění, že ablační práh pro Ce:YAG (minimálně pro použité vlnové délky) je více než trojnásobný oproti hodnotě, kde se začínají projevovat nelineární jevy, což má významný praktický dopad. Jednoznačně jsme totiž prokázali, že tento krystal lze využít v celém intervalu lineární odezvy a využít tak jeho plný potenciál coby scintilátoru bez obav z případných nevratných poškození. Mez linearity lze navíc snadno experimentálně určit pouhým zvyšováním špičkové intenzity, neboť zmíněný trojnásobně vyšší limit pro nevratné poškození poskytuje dostatečnou rezervu pro zjištění, že radioluminiscenční odezva již začíná vykazovat známky saturace.

3.6 Spektroskopie nevratných změn indukovaných v různých materiálech krátkovlnným laserovým zářením

Jak jsme již uvedli, poskytuje Ramanova spektroskopie, jako jedna ze dvou základních metod vibrační spektroskopie, informace o změnách chemické (ve smyslu prostorového a energetického uspořádání kovalentních i nekovalentních vazeb) struktury ozářené látky [81-85]. Naše měření provádíme v uspořádání s budicím mikrosvazkem viditelného kontinuálního laseru, které umožňuje proměření Ramanových spekter s prostorovým rozlišením několika mikrometrů. Tak můžeme porovnat vibrační spektra materiálu pozměněného působením fokusovaného svazku krátkovlnného laseru se spektry původní nezasažené látky. V této kapitole ukážeme na dvou příkladech [P9,P10], jaké možnosti tento přístup poskytuje pro analýzu mechanizmů interakce krátkovlnného laserového záření s hmotou a jejích nevratných následků v materiálu terče. Z praktického hlediska jsou tyto práce důležité pro řešení problému, jak se vyhnout poškození optických prvků používaných pro vedení a fokusaci svazků krátkovlnných laserů a zda resp. jak využít tyto svazky k mikro, resp. nano-strukturování povrchů technicky významných materiálů.

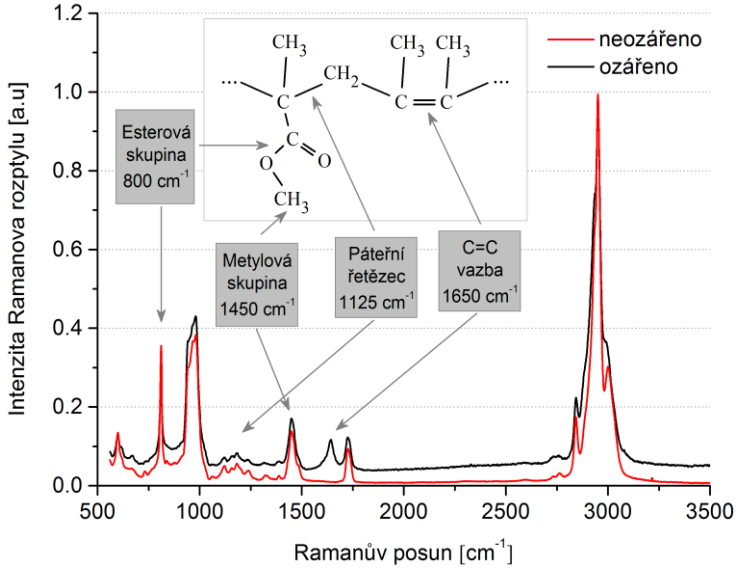
V práci [P9] jsme popsali chování dvou alotropních forem uhlíku vystavených působení fokusovaného EUV FEL svazku (SCSS – *Spring-8 Compact SASE Source*, Osaka, Japonsko) [86] a SXR FEL svazku (FLASH). Jedna ze zmíněných pevných látek je molekulární (fullerenové vrstvy složené z klastrů C_{60} vázaných vzájemně jen slabými mezimolekulárními interakcemi) a druhá kovalentní (amorfní uhlík). V kovaletní pevné látce způsobuje záření postupnou přeměnu a-C na grafit, čímž materiál expanduje a při vyšších fluencích ablauje. Ramanovou spektroskopií můžeme postup a charakter grafitizace dobře sledovat.

Fullerenové vrstvy jsou ablaovány již při nízkých fluencích, mnohem nižších, než jsou ty, které poškozují amorfní fázi. Ramanova spektroskopie však uvnitř kráterů neukazuje žádný nefullerenový uhlík. Z toho plyne, že fotony o energiích desítek eV neštěpí C-C vazby C_{60}. Způsobují něco jiného – fotoefektem ionizují C_{60}. Takto vytvořené kation radikály se navzájem coulombicky odpuzují. K rozkladu materiálu pak dochází intermolekulární coulombickou explozí (ICE – *Intermolecular Couloumb Explosion*) fullerenové pevné fáze, jak ukazují i výsledky počítačové simulace na obr. 9.

	t = 0 fs	t = 1000 fs	t = 1500 fs	t = 2000 fs
Nekompenzovaný náboj, fluence pod prahem				
Nekompenzovaný náboj, fluence nad prahem				
Kompenzovaný náboj, fluence nad prahem				

Obr. 9: Výsledky počítačových simulací [P9] časového vývoje polohy dvou vrstev C_{60} exponovaných FEL záření na plošných hustotách energie (fluencích) pod (horní řádek) a nad (střední řádek) prahem poškození za podmínek, kdy elektrony mohou opouštět studovanou vrstvu. Spodní řádek ukazuje chování soustavy na fluencích vyšších než prahových za předpokladu, že elektrony neopouští vrstvu, kladný náboj na C_{60} je tedy jimi kompenzován a k intermolekulární coulombické explozi nedochází. Tu naopak jasně vidíme ve středním řádku po uplynutí dvou pikosekund od průchodu FEL impulzu.

Práce [P10] ukazuje chování makromolekulárního materiálu vystaveného působení svazku RTG laser s volnými elektrony LCLS. Vzorek PMMA jsme ozářili mnoha akumulovanými impulzy LCLS na několika fluencích nacházejících se pod ablačním prahem materiálu. To vedlo k efektivní desorpci materiálu, která je způsobena radiolýzou polymerního řetězce PMMA (*chain scission*) a vytěkáním malých molekulárních fragmentů do vakua. Ramanova spektroskopie ozářeného povrchu nám ovšem jednoznačně odhalila další proces (viz obr. 10), který je zářením LCLS v PMMA iniciován. Tím je zesítění (*cross linking*) molekul PMMA, které působí proti projevům štěpení řetězců a účinnost desorpce (*etch rate*) snižuje.



Obr. 10: Identifikace procesu síťování molekul PMMA, resp. jeho důsledku v podobě přítomnosti dvojných vazeb C=C [P10]. Vzorek PMMA byl vystaven akumulaci 300 fokusovaných laserových impulzů systému LCLS, jejichž špičková fluence byla udržována na úrovni 40% ablačního prahu pro použitou energii fotonů (830 eV). Při porovnání ramanovských spekter pořízených mimo ozářenou oblast (červeně) a v jejím středu (černě) je na první pohled patrná nová spektrální linie (1650 cm^{-1}) odpovídající nově zformovaným dvojným vazbám.

Studium 3D morfologie vytvořených kráterů spolu s informacemi o výše zmíněných změnách v chemické struktuře materiálu nám umožnily navrhnout model RTG FEL indukované desorpce zahrnující jak vliv štěpení, tak i zesítění polymerních řetězců při ozařování PMMA sériemi akumulovaných impulzů. Tímto modelem jsme rozšířili práci Marca de Grazii a jeho kolegů z výzkumného centra CEA (Saclay u Paříže), kteří se soustředili na simulaci erozních procesů indukovaných svazky vysokých harmonických generovaných s vysokou opakovací frekvencí [87]. Naší snahou bylo v tomto případě přiblížit předpoklady, za kterých lze model použít, podmínkám interakce FEL záření s látkou. Ukazuje se, že na oba procesy – radiační štěpení řetězců a jejich zesítění, lze při simulaci nahlížet zcela nezávisle. Přírůstek hloubky kráteru indukované laserový impulzem je potom dán relativně snadno vyčíslitelným příspěvkem "čisté" desorpce Δ_D (tj. desorpce dosud neexponovaného PMMA) poníženým o vliv vytvrzování PMMA v důsledku formování dvojných C=C vazeb propojujících řetězce polymeru Δ_H (tzv. *hardening*). Pojmem vytvrzování je zde myšleno zvyšování odolnosti provázané polymerní struktury vůči poškození

dalšími impulzy – dvojné vazby se štěpí obtížněji než jednoduché, což dále vede k nižší pravděpodobnosti vzniku desorbovatelných fragmentů:

$$\Delta_i = \int_{d_{i-1}}^{\infty} \left\{ \kappa_0^{des} - \kappa_0^{des} \Delta \left(1 - e^{-\gamma E_{i-1}(z)} \right) \right\} \varepsilon_{i0}\, e^{-\frac{(z-d_{i-1})}{l_{ATT}}} dz = \underbrace{l_{ATT}\, \kappa_0^{des}\, \varepsilon_{i0}}_{\Delta_{i\,D}} \underbrace{- l_{ATT}\, \kappa_0^{des}\, \varepsilon_{i0} \delta \left(1 + \frac{e^{-\Gamma_i} - 1}{\Gamma_i} \right)}_{\Delta_{i\,H}} \quad (1)$$

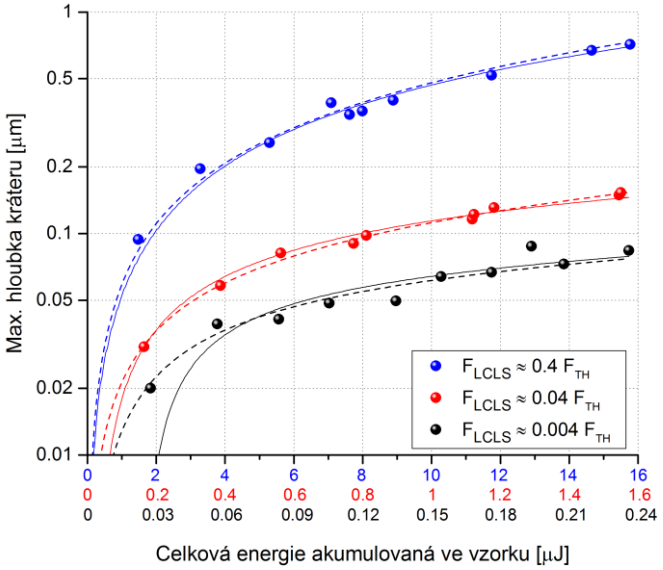
kde l_{ATT}, $\kappa^{des}{}_0$, $E(z)$, ε_0, δ po řadě označují atenuační délku materiálu pro danou energii fotonů, poměr maximální desorpční účinnosti a ablačního prahu PMMA, celkovou dávku deponovanou v hloubce z od předcházejících impulzů, špičkovou hodnotu dávky energie na povrchu vzorku, rozdíl desorpční účinnosti pro případ neozářeného a plně zesíťovaného PMMA, a Γ je bezrozměrná veličina daná předpisem:

$$\Gamma_i = \gamma \sum_{j=0}^{i-1} \varepsilon_{j0}\, e^{-\frac{d_{i-1} - d_{j-1}}{l_{ATT}}} \quad (2)$$

kde γ a d_i zastupují reciprokou charakteristickou hodnotu (ve smyslu exponenciálního útlumu) poklesu desorpční účinnosti se vzrůstající deponovanou dávkou a hloubku kráteru ve vyšetřovaném místě po absorpci i-tého laserového impulzu.

Uvedené vztahy (1) a (2) platí pro monochromatické záření. V práci [P10] jsme provedli zobecnění pro současné působení dvou různých vlnových délek s obecně různou atenuační délkou, čímž bylo možné postihnout reálnou situaci FEL svazků, kde je velmi často nutné počítat s inherentně přítomným zářením na třetí harmonické frekvenci, jehož intenzitu mnohdy není možné zanedbat. Výsledky zahrnuté v této práci ukazují, že s tímto přístupem lze dosáhnout velmi dobré shody vypočtených a naměřených hodnot – viz obr. 11.

Jedním z hlavních přínosů je také možnost simulovat vývoj hloubky kráteru v případě nízkého počtu akumulovaných laserových impulzů, resp. nízké hodnoty akumulované energie, kde se konkurenční model de Grazii a kol. značně odchyluje od reálných naměřených dat.



Obr. 11: Vývoj maximální hloubky kráteru v závislosti na celkové energii laserových impulzů (LCLS) deponované ve vzorku PMMA na třech úrovních fluence pod ablačním prahem. Predikce pomocí modelu de Grazii a kol. je znázorněna plnou čarou, model vyvíjený v rámci mého výzkumu je vyznačen čárkovaně [P10].

4. Souhrn výsledků a výhledy pro další výzkum

V této dizertační práci bylo ukázáno, že studium interakce krátkovlnného laserového záření s hmotou není jen jakýmsi rozšířením, další etapou rozvoje oboru interakcí optického (UV/Vis/NIR) laserového záření, jehož kořeny sahají až do šedesátých let, ale představuje úplně nový směr výzkumu, který EUV/SXR/RTG lasery umožnily sledovat na pomezí fyziky plazmatu a fyziky pevných látek na jedné straně a radiační fyziky, radiometrie a radiační chemie na straně druhé. Přestože motivace a klíčové aplikace těchto výzkumů přicházejí především z astrofyziky a výzkumu fúze, v poslední době se rozšiřuje i do jiných vědních a technologických oborů.

Experimentálně bylo prokázáno, že fokusované krátkovlnné FEL laserové záření produkuje volumetrickým ohřevem pevné látky velmi husté plazma v širokém rozsahu elektronových teplot, od relativně chladného hustého plazmatu (WDM), kde elektronové teploty nabývají hodnot jednotky až desítky eV, až po horkou hustou hmotu (HDM) s elektronovou teplotou mnoha desítek eV až keV. Zároveň byl na vyšších intenzitách pozorován jev saturované absorpce, který vede ke zvýšení transmise pevné látky (podkapitola 3.1). S rostoucí intenzitou se tak prodlužuje atenuační délka a depozice energie je rovnoměrnější, než pokud by se absopce řídila jen Lambertovým-Beerovým zákonem.

Pro objemovou spektroskopickou diagnostiku hustého plazmatu byla sledována jak jeho čárová a pásová emise v extrémním ultrafialovém a měkkém rentgenovém spektrálním oboru, tak jím emitované rentgenfluorescenční (XRF) záření (podkapitola 3.2). Velmi vysoká intezita a značný počet fotonů ve FEL impulzech totiž umožňují měřit rentgenfluorescenci i z lehkých prvků, kde jinak probíhá jen s nízkým výtěžkem a relaxaci nestabilního elektronového stavu s dírou ve vnitřní slupce pozorujeme převážně v podobě Augerova jevu. To předurčuje FEL záření jako účinný nástroj pro diagnostiku zředěných systémů (*dilute systems*), tedy takových, kde se studovaná látka nachází jen ve stopových koncentracích. Nízký výtěžek sledovaného procesu lze totiž kompenzovat intenzivním buzením vhodně naladěným FEL zářením, které nám ve výsledku poskytne nezašuměné XRF spektrum. Za nejvýznamnější výsledek této podkapitoly můžeme považovat přímé experimentální stanovení snížení ionizačního potenciálu iontů v hustém plazmatu (IPD – *ionization potential depression*), které umožnilo testovat různé modely IPD a

mělo nejvýraznější ohlas v komunitě teoretických fyziků hustého plazmatu a astrofyziků.

K povrchové spektroskopické charakterizaci hustého plazmatu generovaného fokusovaným FEL zářením byla použita optická emisní spektroskopii (OES) (podkapitola 3.3), která vykázala nižší excitační a elektronové teploty (a v určitých případech dokonce nulový stupeň ionizace), než krátkovlnná (EUV/SXR/RTG) emisní spektroskopie téhož plazmatu. To je dáno rozdílnou opacitou hustého plazmatu pro elektromagnetické záření různých vlnových délek. Zatímco rentgenové záření proniká hustým plazmatem velmi dobře, viditelné záření téměř vůbec. Důležitý poznatek o chování relativně chladného hustého plazmatu (WDM) v expandujícím ablačním výtrysku přineslo porovnání OE a krátkovlnných spekter hliníkového plazmatu vyvořeného svazkem FLASH s vlnovou délkou 13,5 nm na intenzitách $>10^{16}$ W/cm^2. V OE spektru byly indentifikovány pouze čáry neutrálních atomů a nejvýše jednomocných iontů hliníku. Excitační teplota určená pomocí atomického kódu MARIA byla stanovena na hodnotu nižší než jeden elektronvolt. Naproti tomu krátkovlnná emisní spektra integrovaná z celého objemu ablačního výtrysku obsahovala čáry příslušející iontům Al^+-Al^{3+} (ve spektroskopické notaci Al II – Al IV) a odpovídající elektronová teplota nabývala hodnot mezi 10 a 40 eV (horní odhad zde plyne z absence spektrálních čar Al V). Odtud můžeme učinit závěr o velmi rychlé a účinné rekombinaci, která v expandujícím WDM plazmatu probíhá.

V řadě interakčních experimentů byla pozorována emise iontů. V podkapitole 3.4 uvádíme hmotová spektra zaznamenaná na aparatuře navržené pro využití iontové emise z EUV laserového ablačního výtrysku jako nástroje k analýze materiálového složení a materiálových struktur. Popsané zařízení také využívá dvou výhod plazmových laserů oproti FEL zdrojům, a to polohové stability (*pointing stability*) a vyšší míry reprodukovatelnosti výstupných paramterů výstřel od výstřelu. Umožňuje nám tak vzorkovat zájmový povrch na mikroúrovni s velmi dobrým prostorovým rozlišením. Zvyšuje také spolehlivost a snižuje statistickou chybu měření. Získaná hmotová spektra ovšem vypovídají i o povaze interakce a ablačních procesů indukovaných krátkými impulzy EUV laserového záření. Potvrzují, že delší impulzy plazmových laserů generují více iontů v ablačním výtrysku, než kolik se jich vytváří při izochorické interakci s ultrakrátkým FEL impulzem. Za tento jev je velmi pravděpodobně odpovědné střední a koncová část nanosekundového impulzu, které fotoionizují atomy v expandujícím ablačním výtrysku vytvořeném čelem impulzu.

Přestože hlavní motivace většiny představovaných výzkumů je fundamentální (chceme dosáhnout hlubšího porozumění interakci krátkovlnného záření s hmotou a jejím následkům, především ve srovnání s konvenčními dlouhovlnnými lasery), některé práce vyšly z praktické potřeby experimentování se zdroji nové generace. Pro určení polohy svazků EUV/SXR/RTG laserů a jejich dalších parametrů (hlavně příčného rozdělení intenzity svazku) se používají scintilátory. Možnosti jejich využití jsou obecně omezeny dvěma limitními hodnotami. Předně je zapotřebí nevystavovat scintilační materiály intenzitám přesahujícím tzv. práh poškození, kde, jak sám pojem napovídá, dochází k nevratným materiálovým či strukturním změnám, či dokonce k ablaci. Pro zachování věrohodnosti footprintu a možnosti charakterizovat studovaný svazek pomocí scintilátoru nejen kvalitativně, ale i kvantitativně je navíc nutné snížit dopadající intenzitu ještě více, pod mez saturace luminiscenčního signálu. Pro Ce:YAG, ZnO a $PbWO_4$ jsme stanovili prahy nevratného poškození (ablační prahy) a pro Ce:YAG, který má v praxi nejširší využití, byla proměřena závislost výtěžku radioluminiscence na intenzitě tří laserů s volnými elektrony pracujícími v různých spektrálních oborech - EUV (SCSS), SXR (FLASH) a RTG (LCLS). V podkapitole 3.5 jsou vymezeny ozařovací podmínky, za nichž lze scintilátory na zdrojích čtvrté generace použít pro rychlou charakterizaci svazku.

Významné informace pro studium interakce byly získány analýzou dat z ex situ provedených spektroskopických měření, prováděných na površích vzorků ozářených fokusovanými svazky krátkovlnných laserů dodatečně. V kapitole 3.6 jsou uvedeny dva typické příklady využití Ramanovy spektroskopie s prostorovým rozlišením pro takové účely. V amorfním uhlíku nám tato technika umožnila sledovat průběh strukturní fázové přeměny, kdy působením EUV resp. SXR FEL záření docházelo k přeměně amorfního uhlíku na silně dispergovaný nanokrystalický grafit. Zmíněná metoda vibrační spektroskopie může též poskytnout obraz o produktech radiačně chemických reakcí iniciovaných energetickými fotony RTG FEL zdrojů. V PMMA ozářeném svazkem LCLS byl v rámci předkládané práce pozorován vznik dvojných vazeb spojený s procesem zesítění (*cross linking*) polymerních řetězců. Ten konkuruje štěpení makromolekul (*chain scissions*) vedoucímu ke vzniku malých těkavých molekulárních fragmentů. Ty z ozářeného povrchu desorbují do vakua, což se makroskopicky projevuje jako fotoindukovaná eroze (*vacuum photo-etching*) materiálu. V kapitole 3.6 je popsán model eroze zahrnující jak procesy radiačního štěpení řetězců (erozi podporující), tak jejich zesítění (erozi potlačující). Bez

informací poskytnutých Ramanovou spektroskopií by takový model nebylo možné prakticky doložit, resp. zůstalo by jen u teoretické spekulativní roviny s prakticky nulovou vypovídající hodnotou.

Budoucnost oboru je do značné míry určena dalším vývojem EUV/SXR/RTG laserových zdrojů. Věřím, že jsem v této práci přesvědčivě doložil, že nejperspektivnějším nástrojem experimentálního studia interakce velmi intenzivního krátkovlnného jsou lasery s volnými elektrony (FEL). Jejich plné využití prozatím limituje několik faktorů.

- Jde zatím bez výjimky o velká zařízení, jejichž pořízení je spojeno s miliardovými investicemi.
- Ačkoliv z nich vždy vychází několik drah svazků, na nichž jsou osazeny pracovní stanice, a zdroje pracují téměř nepřetržitě, převyšuje poptávka po experimentálním čase nabídku řádově.
- Patrně nejpalčivějším problémem však stále zůstává samotný mechanizmus SASE. Důsledkem jeho spontánní povahy je značná fluktuace všech výstupních parametrů výstřel od výstřelu (*shot-to-shot fluctuation, pointing instability*). Řešení tohoto problému spočívá v tzv. „seedování“, kdy se do undulátoru spolu s elektronovým oblakem přivádí slabý laserový impulz s precizně definovaným příčným rozdělením intenzity, délkou, synchronizací, atp. FEL systém potom v podstatě slouží „pouze“ jako zesilovač. Tento koncept tak odstraňuje nevýhody zesilování slabého signálu objevujícího se v undulátoru ve zcela náhodném místě a čase.

Klíčový je tedy vývoj nového FEL zdroje, který bude kompaktní, „seedovaný“ a vysokorepetiční. Práce se pak přenesou z úrovně velkých zařízení na běžnou laboratorní úroveň. V současné době můžeme podobné snahy zaregistrovat v Evropě a Japonsku. Američané jdou cestou zvyšování energie fotonů (80 keV) a opakovací frekvence (tzv. *cw FEL*), aktivity Číňanů jsou četné, ale nejasné. Na evropském programu se podílím testováním odolnosti EUV/SXR optických prvků vystavených působení mnoha FEL impulzů přicházejících na jejich povrch s různou opakovací frekvencí a na různých fluencích, které jsou nižší, než je práh poškození jedním impulzem [88,89].

Přestože byly výše zdůrazněny výhody laserů s volnými elektrony i jejich potenciál, nelze to chápat jako začátek konce éry plazmových EUV/SXR laserů. Ty

kromě zřejmých omezení (např. delší doba trvání impulzu, nemožnost plynulého ladění vlnových délek a dosažení vysokých energií fotonů a další) vykazují stále řadu komparativních výhod. Především je to jejich dostupnost, zatím jen plazmové krátkovlnné lasery totiž existují v kompaktních, stolních verzích. Dále jde o stabilitu polohy svazku a jeho dalších charakteristik (výstupní energie, podélného a příčného rozdělení intezity, polohy a šířky spektrální čáry, atp.) výstřel od výstřelu. Také delší doba trvnání impulzu plazmových laserů (desítky pikosekund až nanosekundy pro lasery s ustáleným ziskem a jednotky pikosekund pro lasery s přechodným ziskem [90]), nemusí být vždy nevýhodou. V rámci jednoho takového impulzu lze totiž realizovat experiment typu *pump-probe*, a to bez nutnosti tento impulz dělit a zpožďovat, případně složitě nastavovat synchronizaci hlavního a sondovacího impulzu v případě dvou nezávislých svazků. Také zde můžeme využít toho, že impulzy plazmových laserů jsou jen o málo delší, než jsou charakteristické časy elektron-fononové interakce, kde jde o jednotky pikosekund.

Cílem mého dalšího výzkumu bude kombinovat interakční experimenty v EUV/SXR/RTG spektrálních oborech provedené s plazmovými lasery a FEL systémy tak, abych přispěl k dalšímu objasnění povahy interakce krátkých a velmi krátkých impulzů krátkovlnného záření s hmotou. Především bych rád prohloubil znalosti o tom, jak se liší a v čem je podobná interakci impulzů generovaných konvenčními, dlouhovlnnými lasery. Zatímco práce vykonané na tomto poli s konvenčními lasery jsou enormního rozsahu (čítají zřejmě již desetitisíce otištěných původních článků a zpráv) a provádějí se systematicky již více než padesát let, vedly experimentální práce vykonané s krátkovlnnými lasery zatím jen k desítkám, maximálně stovce publikací. Věřím, že předkládaná dizertační práce částečně napomůže k postupnému narovnání tohoto nepoměru.

5. Závěr

Výsledky dosažené v rámci předkládané dizertační práce:

1) Pomocí absorpčně-transmisních měření na laserových systémech FLASH a LCLS byl uvnitř hustého plazmatu generovaného SXR/RTG laserem identifikován nelineární optický jev – saturovaná absorpce. O získaných poznatcích referují práce [P1] a [P2].

2) Metodami krátkovlnné spektroskopie hustého laserového plazmatu byl zkoumán jev snižování ionizačního potenciálu. Analýzou získaných dat byla potvrzena platnost Eckerova-Kröllova modelu, který se nyní jeví jako přesnější alternativa k doposud preferovanému Stewartovu-Pyattovu modelu. Výsledky tohoto zkoumání byly publikovány v práci [P3], [P4].

3) Experimentálně byl potvrzen význam optické emisní spektroskopie coby nástroje ke komplexní diagnostice hustého laserového plazmatu. Bylo prokázáno, že touto metodou lze získat cenné informace o parametrech především povrchových vrstev generovaného plazmatu, kde se elektronová hustota z pohledu OES jeví jako podkritická [P5].

4) S využitím hmotového spektrometru typu TOF bylo zkoumáno iontové složení ablačního výtrysku plazmatu generovaného EUV kapilárním laserem. Bylo zjištěno, že hmotová spektroskopie může poskytnout důležité informace o jevech probíhajících uvnitř ablačního výtrysku (rekombinace, ionizace, atp.), příp. o rozdílech v chemickém složení zkoumaného materiálu. Část získaných poznatků již byla publikována [P6], část z nich se k publikaci připravuje.

5) Metodou optickoemisní spektroskopie byla zkoumána nelineární radioluminiscenční odezva scintilačního krystalu Ce:YAG. Byla stanovena prahová hodnota absorbované energie, do které lze odezvu tohoto materiálu považovat za lineární a která je tak doporučovaná jako limitní pro praktické využití (32 J/cm^3) [P7]. Dále bylo zjištěno, že na zvolených vlnových délkách dochází k nevratnému poškození tohoto krystalu ablací teprve při trojnásobném překročení prahové hodnoty hodnoty [P8].

6) Rozborem ramanovských spekter byly osvětleny zásadní rozdíly v procesech netepelné ablace indukované krátkovlnnými lasery u dvou odlišných forem uhlíku (amorfní fáze a fulleren C_{60}). V případě amorfního uhlíku byla identifikována fázová přeměna na grafit, která předchází ablaci. U fullerenových vrstev bylo potvrzeno, že za ablaci je odpovědná coulombická exploze fotoionizovaných molekul C_{60} [P9]. Pomocí Ramanovy spektroskopie byl dále identifikován efekt síťování molekulárních řetězců v PMMA ozářeném krátkovlnným fokusovaným laserem na intenzitách pod ablačním prahem. Na tomto základě byl vypracován matematický model popisující proces fotoindukované eroze v PMMA. Výsledky simulací jsou ve velmi dobré shodě s experimentem [P10], ve srovnání s předcházejícím modelem došlo navíc ke zpřesnění v oblasti velmi nízkých fluencí, potažmo akumulovaných energií.

Lze konstatovat, že všechny cíle práce, tak jak byly formulovány v kapitole 2, se podařilo splnit. Získané výsledky ve většině případů korespondují s teoretickými předpověďmi. Navržené matematické modely jsou ve velmi dobré shodě s experimentálními daty a budou jistě užitečnou pomůckou při plánování a vyhodnocování dalších experimentů.

6. Literatura

[1] T. H. Maiman: *"Stimulated optical radiation in ruby"*, Nature **187**, 493 (1960)

[2] B. Rus, T. Mocek, M. Kozlová, A. R. Präg, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux: *"Rentgenový laser: nový nástroj fyzikálního výzkumu"*, Čs. čas. fyz. **52**, 9 (2002)

[3] D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Medecki, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone, T. A. Weaver: *"Demonstration of a soft X-ray amplifier"*, Phys. Rev. Lett. **54**, 110 (1985)

[4] A. N. Zherikhin, K. N. Koshelev, V. S. Letokhov: *"Gain in the far vacuum ultraviolet region due to transitions in multiply charged ions"*, Sov. J. Quant. Electron. **6**, 82 (1976)

[5] J. Hecht: *"The history of X-ray lasers"*, Optics and Photonics News **19**(5), 27 (2008)

[6] P. Jaeglé: *Coherent Sources of XUV Radiation: Soft X-Ray Lasers and High-Order Harmonic Generation*, (Springer, Berlin-Heidelberg-New York 2006)

[7] B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. J. Fields, C. J. Keane, J. A. Koch, R. A. London, D. L. Matthews, S. Maxon, S. Mrowka, A. L. Osterheld, J. H. Scofield, G. Shimkaveg, J. E. Trebes, R. S. Walling: *"Short wavelength x-ray laser research at the Lawrence Livermore National Laboratory*, Phys. Fluids B **4**, 2326 (1992)

[8] H. Daido: *"Review of soft X-ray laser researches and developments"*, Rep. Prog. Phys. **65**, 1513 (2002)

[9] G. J. Tallents: *"The physics of soft X-ray lasers pumped by electron collisions in laser plasmas"*, J. Phys. D **36**, R259 (2003)

[10] P. Jaeglé, S. Suckewer: *"X-Ray laser: past, present, and future"*, Laser Phys. Lett. **6**, 411 (2009)

[11] J. A. Koch, R. W. Lee, J. Nilsen, J. C. Moreno, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva: *"X-ray lasers as sources for resonance-fluorescence experiments"*, Appl. Phys. B **58**, 7 (1994)

[12] B. Rus, A. Carillon, P. Dhez, P. Jaegle, G. Jamelot, A. Klisnick, M. Nantel, P. Zeitoun: *"Efficient, high-brightness soft-x-ray laser at 21.2 nm"*, Phys. Rev. A **55**, 3858 (1997)

[13] B. Rus: *"Saturovaný rentgenový laser na vlnové délce 21 nm a jeho aplikace"*, Čs. čas. fyz. **51**, 272 (2001)

[14] B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux, D. Phalippou: *"Multi-millijoule, highly coherent X-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification"*, Phys. Rev. A **66**, 063806 (2002)

[15] J. J. Rocca, D. C. Beethe, M. C. Marconi: *"Proposal for soft-x-ray and XUV lasers in capillary discharges"*, Opt. Lett. **13**, 565 (1988)

[16] J. J. Rocca, V. N. Shlyaptsev, F. G. Tomasel, O. D. Cortazar, D. Hartshorn, J. L. A. Chilla: *"Demonstration of a discharge pumped table-top soft X-Ray laser"*, Phys. Rev. Lett. **73**, 2192 (1994)

[17] J. J. Rocca: *"Table-top soft x-ray lasers"*, Rev. Sci. Instrum. **70**, 3799 (1999)

[18] S. Heinbuch, M. Grisham, D. Martz, J. J. Rocca: *"Demonstration of a desk-top size high repetition rate soft x-ray laser"*, Opt. Express **13**, 4050 (2005)

[19] J. Chalupský, T. Burian, M. Grisham, V. Hájková, S. Heinbuch, K. Jakubczak, L. Juha, T. Mocek, P. Pira, J. Polan, J. J. Rocca, B. Rus, J. Sobota, L. Vyšín: *"Fokusovaný svazek repetičního kapilárního laseru na 46,9 nm"*, Čs. čas. fyz. **58**, 234 (2008)

[20] T. Mocek, B. Rus, M. Kozlová, M. Stupka, A. R. Präg, J. Polan, M. Bittner, R. Sobierajski, L. Juha: *"Focusing a multimillijoule soft x-ray laser at 21 nm"*, Appl. Phys. Lett. **89**, 051501 (2006)

[21] B. R. Benware, A. Ozols, J. J. Rocca, I. A. Artioukov, V. V. Kondratenko, A. V. Vinogradov: *"Focusing of a tabletop soft-x-ray laser beam and laser ablation"*, Opt. Lett. **24**, 1714 (1999)

[22] E. L. Saldin, E. A. Schneidmiller, M. E. Yurkov: *The Physics of Free-Electron Lasers*, (Springer, Berlin-Heidelberg-NY 2000)

[23] P. Schmüser, M. Dohlus, J. Rossbach, C. Behrens: *Free-Electron Lasers in the Ultraviolet and X-ray Regime, 2nd Ed.*, (Springer, Heidelberg-New York-Dordrecht-London 2014)

[24] K. J. Kim, Z. Huang, R. Lindberg: *Synchrotron Radiation and Free-Electron Lasers*, (Cambridge University Press, Cambridge 2017)

[25] D. A. G. Deacon, L. R. Elias, J. M. J. Madey, G. J. Ramian, H. A. Schwettman, T. I. Smith: *"First operation of a free-electron laser"*, Phys. Rev. Lett. **38**, 892 (1977)

[26] P. Elleaume, Y. Farge: *"Lasery s volnými elektrony"*, Čs. čas. fyz. **A33**, 147 (1983)

[27] R. Bonifacio, C. Pellegrini, L. M. Narducci: *"Collective instabilities and high-gain regime in a free-electron laser"*, Opt. Commun. **50**, 373 (1984)

[28] L. Juha, V. Hájková, S. Koptyaev, A. Velyhan, J. Kuba, J. Cihelka, J. Chalupský: *"První uživatelské experimenty s rentgenovým laserem na volných elektronech v HASYLAB/ DESY"*, Čs. čas. fyz. **56**, 356 (2006)

[29] M. Berrill, F. Brizuela, B. Langdon, H. Bravo, C. S. Menoni, J. J. Rocca: *"Warm photoionized plasmas created by soft-x-ray laser irradiation of solid targets"*, J. Opt. Soc. Amer. B **29**, B35 (2008)

[30] U. Zastrau, C. Fortmann, R. R. Fäustlin, L. F. Cao, T. Döppner, S. Düsterer, S. H. Glenzer, G. Gregori, T. Laarmann, H. J. Lee, A. Przystawik, P. Radcliffe, H. Reinholz, G. Röpke, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, N. X. Truong, S. Toleikis, I. Uschmann, A. Wierling, T. Tschentscher, E. Förster, R. Redmer: *"Bremsstrahlung and line spectroscopy of warm dense aluminum plasma heated by xuv free-electron-laser radiation"*, Phys. Rev. E **78**, 066406 (2008)

[31] L. Juha, J. Krása, A. Cejnarová, D. Chvostová, V. Vorlíček, J. Krzywinski, R. Sobierajski, A. Andrejczuk, M. Jurek, D. Klinger, H. Fiedorowicz, A. Bartnik, M. Pfeifer, P. Kubát, L. Pína, J. Kravárik, P. Kubeš, Yu. L. Bakshaev, A. S. Chernenko, V. D. Korolev, M. I. Ivanov, M. Scholz, L. Ryc, J. Feldhaus, J. Ullschmied, F. P. Boody: *"Ablation of various materials with intense XUV radiation"*, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. **A507**, 577 (2003)

[32] J. Krzywinski, R. Sobierajski, M. Jurek, R. Nietubyc, J. B. Pelka, L. Juha, M. Bittner, V. Letal, V. Vorlicek, A. Andrejczuk, J. Feldhaus, B. Keitel, E. Saldin, E. Schneidmiller, R. Treusch, M. Yurkov: *"Conductors, semiconductors and insulators irradiated with short-wavelength free-electron laser"*, J. Appl. Phys. **101**, 043107 (2007)

[33] R. W. Lee, H. A. Baldis, R. C. Cauble, O. L. Landen, J. S. Wark, A. Ng, S. J. Rose, C. Lewis, D. Riley, J. C. Gauthier, P. Audebert: *"Plasma-based studies with intense X-ray and particle beam sources"*, Laser Part. Beams **20**, 527 (2002)

[34] K. Jungwirth, M. Bittner, L. Juha, V. Kmetík, J. Kodymová, J. Krása, T. Mocek, O. Renner, K. Rohlena, B. Rus., P. Straka, J. Ullschmied: *"Fyzika vysokých hustot energie"*, Čs. čas. fyz. **55**, 331 (2005)

[35] K. Falk: *"Experimental methods for warm dense matter research"*, High Power Laser Sci. Eng. **6**, e59 (2018)

[36] L. Juha, M. Bittner, D. Chvostova, J. Krasa, M. Kozlova, M. Pfeifer, J. Polan, A. R. Präg, B. Rus, M. Stupka, J. Feldhaus, V. Letal, Z. Otcenasek, J. Krzywinski, R. Nietubyc, J. B. Pelka, A. Andrejczuk, R. Sobierajski, L. Ryc, F. P. Boody, H. Fiedorowicz, A. Bartnik, J. Mikolajczyk, R. Rakowski, P. Kubat, L. Pina, M. Horvath, M. E. Grisham, G. O. Vaschenko, C. S. Menoni, J. J. Rocca: *"Short-wavelength ablation of molecular solids: pulse duration and wavelength effects"*, J. Microlith. Microfab. Microsyst. **4**, 033007 (2005)

[37] M. Fajardo, P. Zeitoun, J. C. Gauthier: *"Hydrodynamic simulation of XUV laser-produced plasmas"*, Eur. Phys. J. D **29**, 69 (2004)

[38] B. Rus, T. Mocek, M. Kozlová, J. Polan, P. Homer, M. Fajardo, M. E. Foord, H. Chung, S. J. Moon, R. W. Lee: *"High energy density matter generation using a focused soft-X-ray laser for volumetric heating of thin foils"*, High Energy Density Physics **7**, 11 (2011)

[39] S. Toleikis, T. Bornath, T. Döppner, S. Düsterer, R. R. Fäustlin, E. Förster, C. Fortmann, S. H. Glenzer, S. Göde, G. Gregori, R. Irsig, T. Laarmann, H. J. Lee, B. Li, K.-H. Meiwes-Broer, J. Mithen, B. Nagler, A. Przystawik, P. Radcliffe, H. Redlin, R. Redmer, H. Reinholz, G. Röpke, F. Tavella, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, I. Uschmann, S. M. Vinko, T. Whitcher, U. Zastrau, B. Ziaja, T. Tschentscher: *"Probing near-solid density plasmas using soft x-ray scattering"*, J. Phys. B **43**, 194017 (2010)

[40] S. H. Glenzer, R. Redmer: *"X-ray Thomson scattering in high energy density plasmas"*, Rev. Mod. Phys. **81**, 1625 (2009)

[41] R. Sobierajski, J. Krzywinski, A. Andrzejczuk, U. Hahn, R. Treusch, M. Jurek, D. Klinger, R. Nietubyc, J. B. Pelka, H. Reniewicz, M. Sikora, W. Sobala: *"Experimental station to study the interaction of intense femtosecond vacuum ultraviolet pulses with matter at TTF1 free electron laser"*, Rev. Sci. Instrum. **76**, 013909 (2005)

[42] B. Iwan, J. Andreasson, A. Andrejczuk, E. Abreu, M. Bergh, C. Caleman, A. J. Nelson, S. Bajt, J. Chalupsky, H.N. Chapman, R.R. Fäustlin, V. Hajkova, P.A. Heimann, B. Hjörvarsson, L. Juha, D. Klinger, J. Krzywinski, B. Nagler, G.K. Pálsson, W. Singer, M.M. Seibert, R. Sobierajski, S. Toleikis, T. Tschentscher, S.M. Vinko, R.W. Lee, J. Hajdu, N. Tîmneanu: *"TOF-OFF: A method for determining focal positions in tightly focused free-electron laser experiments by measurement of ejected ions"*, High Energy Density Physics **7**, 336 (2011)

[43] P. Jaeglé, S. Sebban, A. Carillon, G. Jamelot, A. Klisnick, P. Zeitoun, B. Rus, M. Nantel, F. Albert, D. Ros: "*Ultraviolet luminescence of CsI and CsCl excited by soft x-ray laser"*, J. Appl. Phys. **81**, 2406 (1997)

[44] L. Juha: *"Ablace materiálů měkkým rentgenovým zářením"*, Čs. čas. fyz. **50**, 110 (2000)

[45] M. Kirm, A. Andrejczuk, J. Krzywinski, R. Sobierajski: *"Influence of excitation density on luminescence decay in $Y_3Al_5O_{12}$:Ce and BaF_2 crystals excited by free electron laser radiation in VUV"*, Physica statu solidi C **2**, 649 (2005)

[46] L. Juha, V. Hájková, J. Chalupský, V. Vorlíček, A. Ritucci, A. Reale, P. Zuppella, M. Störmer: *"Radiation damage to amorphous carbon thin films irradiated by multiple 46.9 nm laser shots below the single-shot damage threshold"*, J. Appl. Phys. **105**, 093117 (2009)

[47] R. K. Lam, S. L. Raj, T. A. Pascal, C. D. Pemmaraju, L. Foglia, A. Simoncig, N. Fabris, P. Miotti, Ch. J. Hull, A. M. Rizzuto, J. W. Smith, R. Mincigrucci, C. Masciovecchio, A. Gessini, G. De Ninno, B. Diviacco, E. Roussel, S. Spampinati, G. Penco, S. Di Mitri, M. Trovò, M. B. Danailov, S. T. Christensen, D. Sokaras, T.-Ch. Weng, M. Coreno, L. Poletto, W. S. Drisdell, D. Prendergast, L. Giannessi, E. Principi, D. Nordlund, R. J. Saykally, C. P. Schwartz: *"Two-photon absorption of soft X-ray free electron laser radiation by graphite near the carbon K-absorption edge"*, Chem. Phys. Lett. **703**, 112 (2018)

[48] V. S. Letokhov: *Nonlinear Laser Chemistry. Multiple-Photon Excitation*, (Springer, Berlin-Heidelberg-NY 1983)

[49] A. E. Siegman: *Lasers*, (University Science Books, Mill Valley 1986), str. 1104

[50] A. J. Nelson, S. Toleikis, H. Chapman, S. Bajt, J. Krzywinski, J. Chalupsky, L. Juha, J. Cihelka, V. Hajkova, L. Vysin, T. Burian, M. Kozlova, R. R. Fäustlin, B. Nagler, S. M. Vinko, T. Whitcher, T. Dzelzainis, O. Renner, K. Saksl, A. R. Khorsand, P. A. Heimann, R. Sobierajski, D. Klinger, M. Jurek, J. Pelka, B. Iwan, J. Andreasson, N.

Timneanu, M. Fajardo, J. S. Wark, D. Riley, T. Tschentscher, J. Hajdu, R. W. Lee: *"Soft x-ray free electron laser microfocus for exploring matter under extreme conditions"*, Opt. Express **17**, 18271 (2009)

[51] H. Hora: *Nonlinear Plasma Dynamics at Laser Irradiation*, (Springer, Berlin-Heidelberg-New York 1979)

[52] *Laser-Plasma Interactions* (R. A. Cairns, J. J. Sanderson, eds.), (SUSSP Publications, Edinburgh 1980)

[53] *Physics of Laser Plasma* (A. Rubenchik, S. Witkowski, eds.), (North Holland, Amsterdam-London-New York-Tokyo 1991)

[54] P. Gibbon: *Short Pulse Laser Interaction with Matter*, (Imperial College Press, London 2005)

[55] *Laser-Plasma Interactions* (D. A. Jaroszynski, R. Bingham, R. A. Cairns, eds.), (CRC Press, Boca Raton 2009)

[56] T. Burian, J. Chalupský, V. Hájková, P. Boháček, L. Juha: *"LCLS (Linac Coherent Light Source) - hodnotný dar ke čtyřicátým narozeninám fyziky vysokých hustot energie"*, Čs. čas. fyz. **59**, 357 (2009)

[57] H. Yoneda, Y. Inubushi, T. Tanaka, Y. Yamaguchi, F. Sato, S. Morimoto, T. Kumagai, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, H. Kitamura, R. Kodama: *"Ultra-fast switching of light by absorption saturation in vacuum ultra-violet region"*, Opt. Express **17**, 23443 (2009)

[58] A. Di Cicco, K. Hatada, E. Giangrisostomi, R. Gunnella, F. Bencivenga, E. Principi, C. Masciovecchio, A. Filipponi: *"Interplay of electron heating and saturable absorption in ultrafast extreme ultraviolet transmission of condensed matter"*, Phys. Rev. E **90**, 220303 (2014)

[59] H. Yoneda, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Katayama, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, H. Kitamura: *"Saturable absorption of intense hard X-rays in iron"*, Nat. Commun. **5**, 5080 (2014)

[60] J. C. Stewart, K. D. Pyatt: *"Lowering of ionization potentials in plasmas"*, Astrophys. J. **144**, 1203 (1966)

[61] G. Ecker, W. Kröll: *"Lowering of the ionization energy for a plasma in thermodynamic equilibrium"*, Phys. Fluids **6**, 62 (1963)

[62] D. Umstadter: *"Extreme X-rays probe extreme matter"*, Physics **5**, 88 (2012)

[63] O. Ciricosta, S. M. Vinko, B. Barbrel, D. S. Rackstraw, T. R. Preston, T. Burian, J. Chalupsky, B. I. Cho, H. K. Chung, G. L. Dakovski, K. Engelhorn, V. Hajkova, P. Heimann, M. Holmes, L. Juha, J. Krzywinski, R. W. Lee, S. Toleikis, J. J. Turner, U. Zastrau, J. S. Wark: *"Measurements of continuum lowering in solid-density plasmas created from elements and compounds"*, Nat. Commun. **7**, 11713 (2016)

[64] T. Burian: *"Hvězdná hmota v kalifornské laserové laboratoři"*, Čs. čas. fyz. **62**, 76 (2012)

[65] G. F. Marr: *Plasma Spectroscopy*, (Elsevier, Amsterdam-London-New York 1968)

[66] H. R. Griem: *Principles of Plasma Spectroscopy*, (Cambridge University Press, Cambridge 1997)

[67] I. H. Hutchinson: *Plasma Diagnostics*, *2nd Edition*, (Cambridge University Press, Cambridge 2002)

[68] H. J. Kunze: *Introduction to Plasma Spectroscopy*, (Springer, Berlin-Heidelberg-New York 2009)

[69] R. Hergenroder, O. Samek, V. Hommes: *"Femtosecond laser ablation elemental mass spectrometry"*, Mass Spectrom. Rev. **25**, 551 (2006)

[70] K. Tanaka, H. Waki, Y. Ido: *"Protein and polymer analyses up to m/z 100 000 by laser ionization time-of-flight mass spectrometry"*, Rapid. Commun. Mass Spectrom. **2**, 151 (1988)

[71] P. Sigel: *"Diagnostics of particle emission"*, in *Laser-Plasma Interactions* (R. A. Cairns, J. J. Sanderson, eds.), SUSSP Publications, Edinburgh 1980, str. 661

[72] E. Woryna, P. Parys, J. Wolowski, W. Mroz: *"Corpuscular diagnostics and processing methods applied in investigations of laser-produced plasma as a source of highly ionized ions"*, Laser Part. Beams **14**, 293 (1996)

[73] S. P. D. Mangles, C. D. Murphy, Z. Najmudin, A. G. R. Thomas, J. L. Collier, A. E. Dangor, E. J. Divall, P. S. Foster, J. G. Gallacher, C. J. Hooker, D. A. Jaroszynski, A. J. Langley, W. B. Mori, P. A. Norreys, F. S. Tsung, R. Viskup, B. R. Walton, K. Krushelnick: *"Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions"*, Nature **431**, 535 (2004)

[74] D. Margarone, A. Velyhan, J. Dostal, J. Ullschmied, J. P. Perin, D. Chatain, S. Garcia, P. Bonnay, T. Pisarczyk, R. Dudzak, M. Rosinski, J. Krasa, L. Giuffrida, J. Prokupek, V. Scuderi, J. Psikal, M. Kucharik, M. De Marco, J. Cikhardt, E. Krousky, Z. Kalinowska, T. Chodukowski, G. A. P. Cirrone, G. Korn: *"Proton acceleration driven by a nanosecond laser from a cryogenic thin solid-hydrogen ribbon"*, Phys. Rev. X **6**, 041030 (2016)

[75] L. Láska, K. Jungwirth, B. Králiková, J. Krása, M. Pfeifer, K. Rohlena, J. Skála, J. Ullschmied, J. Badziak, P. Parys, J. Wolowski, E. Woryna, S. Gammino, L. Torrisi, F. P. Boody, H. Hora: *"Generation of multiply charged ions at low and high laser-power densities"*, Plasma Phys. Contr. Fusion **45**, 585 (2003)

[76] H. Daido, M. Nishiuchi, A. S. Pirozhkov: *"Review of laser-driven ion sources and their applications"*, Rep. Prog. Phys. **75**, 056401 (2012)

[77] P. Lenard, A. Becker: *Handbuch der Experimentalphysik* **14**, (Springer, Berlin 1927), kapitola *Kathodenstrahlen*

[78] W. Wien: *Handbuch der Experimentalphysik* **14**, (Springer, Berlin 1927), kapitola *Kanalstrahlen*

[79] W. Crookes: *"The emanations of radium"*, Proc. Roy. Soc. (London) A **71**, 405 (1903)

[80] E. Rutherford: *Radioaktivität*, (Springer, Berlin 1907), str. 163

[81] A. Anderson: *The Raman Effect*, *Vols 1 (Principles) and 2 (Applications),* (Dekker, New York 1971 - 1. díl a 1973 - 2. díl)

[82] M. Horák, A. Vítek: Zpracování a interpretace vibračních specter, (SNTL, Praha 1980)

[83] H. Kuzmany: *Solid-State Spectroscopy*, (Springer, Berlin-Heidelberg-New York 1998)

[84] A. C. Ferrari, J. Robertson: *"Interpretation of Raman spectra of disordered and amorphous carbon"*, Phys. Rev. B **61**, 14095 (2000)

[85] D. L. Gerrard, W. F. Maddam: *"Polymer characterization by Raman spectroscopy",* Appl. Spectr. Rev. **22**, 251 (1986)

[86] T. Shintake, H. Tanaka, T. Hara, T. Tanaka, K. Togawa, M. Yabashi, Y. Otake, Y. Asano, T. Bizen, T. Fukui, S. Goto, A. Higashiya, T. Hirono, N. Hosoda, T. Inagaki, S. Inoue, M. Ishii, Y. Kim, H. Kimura, M. Kitamura, T. Kobayashi, H. Maesaka, T. Masuda, S. Matsui, T. Matsushita, X. Maréchal, M. Nagasono, H. Ohashi, T. Ohata, T. Ohshima, K. Onoe, K. Shirasawa, T. Takagi, S. Takahashi, M. Takeuchi, K. Tamasaku, R. Tanaka, Y. Tanaka, T. Tanikawa, T. Togashi, S. Wu, A. Yamashita, K. Yanagida, C. Zhang, H. Kitamura, T. Ishikawa: *"A compact free-electron laser for generating coherent radiation in the extreme ultraviolet region"*, Nat. Photonics **2**, 555–559 (2008)

[87] M. De Grazia, H. Merdji, T. Auguste, B. Carré, J. Gaudin, G. Geoffroy, S. Guizard, F. Krejci, J. Kuba, J. Chalupský, J. Cihelka, V. Hajkova, M. Ledinský and L. Juha: *"Desorption mechanisms in PMMA irradiated by high order harmonics"*, Proc. of SPIE 8077, 80770L-1-80770L-10 (2011).

[88] R. Sobierajski, I. Jacyna, P. Dluzewski, M. T. Klepka, D. Klinger, J. B. Pelka, T. Burian, V. Hajkova, L. Juha, K. Saksl, V. Vozda, I. Makhotkin, E. Louis, B. Faatz, K. Tiedtke, S. Toleikis, H. Enkisch, M. Hermann, S. Strobel, R. A. Loch, J. Chalupsky: *"Role of heat accumulation in the multi-shot damage of silicon irradiated with femtosecond XUV pulses at a 1 MHz repetition rate",* Opt. Express **24**, 15468 (2016)

[89] I. A. Makhotkin, R. Sobierajski, J. Chalupsky, K. Tiedtke, G. de Vries, M. Stoermer, F. Scholze, F. Siewert, R. W. E. van de Kruijs, I. Milov, E. Louis, I. Jacyna, M. Jurek, D. Klinger, L. Nittler, Y. Syryanyy, L. Juha, V. Hajkova, V. Vozda, T. Burian, K. Saksl, B. Faatz, B. Keitel, E. Ploenjes, S. Schreiber, S. Toleikis, R. Loch, M. Hermann, S. Strobel, H. Nienhuys, G. Gwalt, T. Mey, H. Enkisch: *"Experimental study of EUV-mirror radiation damage resistance under long term FEL exposures below the single shot damage threshold",* J. Synchrotron Rad. **25**, 77 (2018)

[90] J. Kuba, J. Limpouch, L. Drška: *"Rentgenové lasery: Od hvězdných válek až na stůl"*, Čs. čas. fyz. **55**, 446 (2005)

7. Příloha

7.1 Seznam přiložených prací

[P1] B. Nagler, U. Zastrau, R. Fäustlin, S. M. Vinko, T. Whitcher, A. J. Nelson, R. Sobierajski, J. Krzywinski, J. Chalupsky, E. Abreu, S. Bajt, T. Bornath, T. Burian, H. Chapman, J. Cihelka, T. Döppner, S. Düsterer, T. Dzelzainis, M. Fajardo, E. Förster, C. Fortmann, E. J. Galtier, S. H. Glenzer, S. Göde, G. Gregori, V. Hajkova, P. Heimann, L. Juha, M. Jurek, F. Y. Khattak, A. R. Khorsand, D. Klinger, M. Kozlova, T. Laarmann, H. J. Lee, R. Lee, K.-H. Meiwes-Broer, P. Mercere, W. J. Murphy, A. Przystawik, R. Redmer, H. Reinholz, D. Riley, G. Röpke, F. Rosmej, K. Saksl, R. Schott, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, T. Tschentscher, I. Uschmann, H. J. Vollmer, J. Wark: *"Turning solid aluminium transparent by intense soft X-ray photo-ionization"*, Nat. Physics **5**, 693 (2009)

[P2] D. S. Rackstraw, O. Ciricosta, S. M. Vinko, B. Barbrel, T. Burian, J. Chalupský, B. I. Cho, H.-K. Chung, G. L. Dakovski, K. Engelhorn, V. Hájková, P. Heimann, M. Holmes, L. Juha, J. Krzywinski, R. W. Lee, S. Toleikis, J. J. Turner, U. Zastrau, J. S. Wark: *"Saturable absorption of an x-ray free-electron-laser heated solid-density aluminium plasma"*, Phys. Rev. Lett. **114**, 015003 (2015)

[P3] O. Ciricosta, S. M. Vinko, H.-K. Chung, B.-I. Cho, C. R. D. Brown, T. Burian, J. Chalupský, K. Engelhorn, R.W. Falcone, C. Graves, V. Hájková, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H. J. Lee, M. Messerschmidt, C. D. Murphy, Y. Ping, D. S. Rackstraw, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, J. J. Turner, L. Vyšín, T. Wang, B. Wu, U. Zastrau, D. Zhu, R.W. Lee, P. Heimann, B. Nagler, J. S. Wark: *"Direct measurements of the ionization potential depression in a dense plasma"*, Phys. Rev. Lett. **109**, 065002 (2012)

[P4] S. M. Vinko, O. Ciricosta, B.-I. Cho, K. Engelhorn, H.-K. Chung, C. Brown, T. Burian, J. Chalupsky, R. Falcone, C. Graves, V. Hajkova, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H. J. Lee, M. Messerschmidt, C. Murphy, Y. Ping, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, J. J. Turner, L. Vysin, T. Wang, B. Wu, U. Zastrau, D. Zhu, R. W. Lee, P. A. Heimann, B. Nagler, J. S. Wark: *"Creation and diagnosis of solid-density hot-dense matter with an X-ray free-electron laser"*, Nature **482**, 59 (2012)

[P5] U. Zastrau, S. M. Vinko, J. S. Wark, R. R. Fäustlin, N. Medvedev, S. Toleikis, T. Tschentscher, T. Burian, J. Chalupsky, L. Juha, C. Fortmann, S. H. Glenzer, R. W. Lee, A. J. Nelson, T. W. J. Dzelzainis, D. Riley, B. Nagler, E. Galtier, F. B. Rosmej, E. Förster: *"XUV spectroscopic characterization of warm dense aluminum plasmas generated by the free-electron-laser FLASH"*, Laser Part. Beams **30**, 45 (2012)

[P6] T. Burian, I. Kuznetsov, L. Juha, J. J. Rocca, C. S. Menoni: *"Hmotová spektrometrická mikroskopie využívající ablace XUV laserem",* Čs. čas. fyz. **65**, 259 (2015)

[P7] J. Krzywinski, A. Andrejczuk, R. M. Bionta, T. Burian, J. Chalupský, M. Jurek, M. Kirm, V. Nagirnyi, R. Sobierajski, K. Tiedtke, S. Vielhauer, L. Juha: *"Saturation of a Ce:$Y_3Al_5O_{12}$ scintillator response to ultra-short pulses of extreme ultraviolet, soft x-ray and x-ray laser radiation",* Opt. Mat. Express **7**, 665 (2017)

[P8] T. Burian, V. Hájková, J. Chalupský, L. Vyšín, P. Boháček, M. Přeček, J. Wild, C. Özkan, N. Coppola, S. D. Farahani, J. Schulz, H. Sinn, T. Tschentscher, J. Gaudin, S. Bajt, K. Tiedtke, S. Toleikis, H. N. Chapman, R. A. Loch, M. Jurek, R. Sobierajski, J. Krzywinski, S. Moeller, M. Harmand, G. Galasso, M. Nagasono, K. Saksl, P. Sovák, L. Juha: *"Soft x-ray free-electron laser induced damage to inorganic scintillators"*, Opt. Mat. Express **5**, 254 (2015)

[P9] M. Toufarová, V. Hájková, J. Chalupský, T. Burian, J. Vacík, V. Vorlíček, L. Vyšín, J. Gaudin, N. Medvedev, B. Ziaja, M. Nagasono, M. Yabashi, R. Sobierajski, J. Krzywinski, H. Sinn, M. Störmer, K. Koláček, K. Tiedtke, S. Toleikis, L. Juha: "*Contrasting behavior of covalent and molecular carbon allotropes exposed to extreme ultraviolet and soft x-ray free-electron laser radiation"*, Phys. Rev. B **96**, 214101 (2017)

[P10] T. Burian, M. Toufarová, J. Chalupský, V. Hájková, V. Vorlíček, S. Hau-Riege, J. Krzywinski, J. D. Bozek, C. Bostedt, A. T. Graf, U. F. Jastrow, S. Kapicky, R. A. London, M. Messerschmidt, S. Moeller, R. Sobierajski, K. Tiedtke, M. de Grazia, T. Auguste, B. Carré, S. Guizard, H. Merdji, N. Medvedev, L. Juha: *"Sub-threshold erosion of an organic polymer induced by multiple shots of the x-ray free-electron laser"*, J. Chem. Phys., podáno do redakce

7.2 Autorský podíl na dosažených výsledcích

Během výzkumu souvisejícího s pracemi [P1-P10] jsem se aktivně podílel jak na experimentech věnovaných získávání dat, tak na jejich vyhodnocování i samotné publikaci. Můj přínos lze specifikovat následovně:

- [P1-P4] ... Charakterizace příčného rozložení intenzity laserového svazku ve fokusu pomocí ablačních imprintů v PMMA a $PbWO_4$, aktivní účast na přípravě a realizaci interakčního experimentu (především nastavení terčového uspořádání a diagnostik), extrakce, systematizace a zpracování dat.
- [P5] ..... Charakterizace příčného rozložení intenzity laserového svazku ve fokusu pomocí ablačních imprintů v PMMA, účast na nastavení optimálního experimentálního uspořádání, záznam a interpretace OE spekter.
- [P6] ..... Záznam MS spekter na EUV laserové aparatuře, jejich interpretace a příprava publikace, kde jsem prvním autorem.
- [P7] ..... Vyhodnocení dat radioluminiscenční emise z Ce:YAG scintilátoru ozářeného impulzy FEL pracujícími v různých spektrálních oborech, analýza dat a příprava výsledků k publikaci, kde jsem korespondujícícm autorem.
- [P8] ..... Charakterizace příčného rozložení intensity laserového svazku ve fokusu pomocí ablačních imprintů v PMMA, ozařování vybraných scintilačních materiálů, vyhodnocení prahů poškození, příprava publikace, kde jsem prvním autorem.
- [P9] ..... Ozařování uhlíkatých vzorků na různých FEL zařízeních, vyhodnocování ramanovských spekter, analýza dat a zpracování výsledků k publikaci.
- [P10] ..... Ozařování vzorku PMMA fokusovaným LCLS svazkem, vyhodnocení prahu ablačního poškození a míry podprahové eroze, vyhodnocení ramanovských spekter, návrh matematického modelu fotoindukované eroze a jeho aplikace na experimentální data, příprava rukopisu publikace, kde jsem prvním autorem.