

Univerzita Karlova v Praze
Matematicko-fyzikální fakulta



Ablace materiálů fokusovaným zářením XUV laserů

Disertační práce v oboru f-2,
Fyzika plazmatu a ionizovaných prostředí

Michal Bittner

Školitel: Doc. RNDr. Jan Wild, CSc.
Katedra fyziky povrchů a plazmatu

Praha 2007

Děkuji svým kolegům a přátelům za odbornou i morální pomoc.

Zvláště děkuji Liboru Juhovi za trpělivost, obětavost a cenné rady nejen v otázkách ablace. Svému školiteli Janu Wildovi děkuji za vedení doktorské práce. Za mnohé vděčím Jiřímu Skálovi, Boženě Králíkové a celému týmu laserové laboratoře PALS. Dále děkuji za spolupráci B. Rusovi, M. Kozlové, J. Polanovi, A. R. Prägovi, M. Stupkovi, T. Mockovi, R. Sobierajskemu, R. Nietubycovi, J. Krzywinskemu, A. Bartnikovi, L. Rycovi, H. Merdjimu, S. Guizardovi, M. De Graziovi, D. Chvostové, J. Vorlíčkovi, T. Matesovi, S. Civišovi, D. Babánkové, J. Cihelkovi, J. Krásovi, A. Velyhanovi, Z. Otčenáškoví a V. Létalovi.

Svým rodičům a Janče děkuji za podporu při studiu a psaní této práce.

Obsah

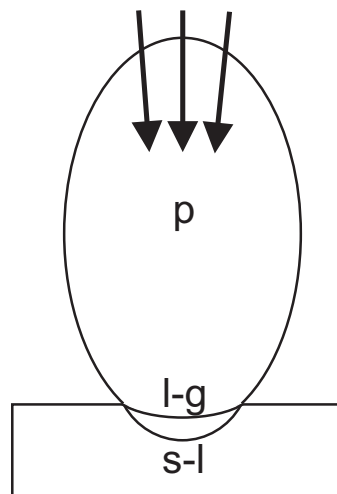
| | | |
|----------|--|-----------|
| 1 | Úvod | 4 |
| 2 | Ablace dlouhovlnným (UV-VIS-IR) zářením | 7 |
| 2.1 | Základní popis ablace | 7 |
| 2.2 | Mechanismy ablace | 9 |
| 2.2.1 | Ablace kovů a polovodičů nanosekundovými pulsy | 9 |
| 2.2.2 | Ablace polymerů nanosekundovými pulsy | 9 |
| 2.2.3 | Ablace femtosekundovými pulsy | 10 |
| 2.3 | Laserem indukované periodické struktury (LIPSS) | 11 |
| 2.3.1 | LIPSS I. druhu | 11 |
| 2.3.2 | LIPSS II. druhu | 12 |
| 3 | Ablace XUV zářením | 13 |
| 3.1 | Interakční procesy | 14 |
| 3.1.1 | Fotoionizace | 14 |
| 3.1.2 | Interakce XUV záření s plazmatem | 15 |
| 3.1.3 | Sekundární elektrony, kaskády | 16 |
| 3.1.4 | Radiačně-chemické reakce | 16 |
| 3.2 | Principy XUV laserů | 16 |
| 3.2.1 | Lasery v horkém hustém plazmatu | 16 |
| 3.2.2 | Lasery na volných elektronech | 19 |
| 3.2.3 | Svazky vysokých harmonických frekvencí | 21 |
| 3.3 | XUV ablace pevných látek | 22 |
| 4 | Cíle práce | 25 |
| 5 | Experimentální část | 26 |
| 5.1 | Zdroje záření využité při výzkumu ablace v XUV oboru | 27 |
| 5.1.1 | Neonu-podobný zinkový laser | 27 |
| 5.1.2 | Svazek vysokých harmonických frekvencí | 29 |
| 5.1.3 | Neonu-podobný argonový laser | 31 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 5.1.4 | Laser na volných elektronech | 32 |
| 5.2 | Diagnostické metody | 33 |
| 5.3 | Vzorky | 35 |
| 6 | Výsledky | 37 |
| 6.1 | XUV ablace křemíku | 37 |
| 6.2 | XUV ablace organických polymerů | 41 |
| 6.3 | Laserem indukované periodické struktury (LIPSS) | 44 |
| 6.4 | Vliv délky pulsu na účinnost XUV ablace | 46 |
| 6.5 | Poškození vrstev amorfního uhlíku XUV zářením | 48 |
| 7 | Závěr | 50 |
| | Použitá literatura | 52 |
| | Odkazy na autorovy práce | 59 |
| | Přílohy: Původní práce autora a spolupracovníků | 62 |

Kapitola 1

Úvod

Ablace (od lat. 'ablatio' - odstranění) patří mezi dramatické projevy interakce světla a kondenzované (nejčastěji pevné) látky. Vyznačuje se tím, že makroskopické množství ozářené látky je natrvalo odstraněno z povrchu a vzniká kráter. Zároveň s ablací dochází k řadě dalších nevratných změn povrchu, které souhrnně označujeme jako poškození (laser-induced damage). Podílí se na nich celá škála fyzikálních procesů, např. fázové změny (tavení, vypařování), mechanické (repulze, trhání povrchu) a hydrodynamické (výrony taveniny, kapek) efekty. V případě molekulárně složitějších látek se mohou uplatňovat také fotochemické a radiačně chemické procesy. Při vyšších intenzitách a krátkých vlnových délkách hraje roli ionizace vyvržené látky a vznik plazmatu.



Obrázek 1.1: Laserová ablace jako souhra několika fázových přeměn.

Na úvod si ablaci představme jako souhru několika fázových přeměn [1] podle obrázku 1.1. Pevný materiál (s) se v tenkých vrstvách mění v kapalinu (l) a plyn (g). Fázová rozhraní (s-l) a (l-g) se pohybují dovnitř materiálu, zatímco vnější plynná fáze expanduje ve formě oblaku pryč od povrchu, a je-li ionizována, vytváří laserové plazma (p).

Na základě této jednoduché představy snadno nahlédneme širší aplikací, v nichž se dnes ablace využívá. Působením laserového svazku lze s vysokým prostorovým rozlišením upravovat a opracovávat povrchy [2, 3]. Depozicí odpařeného materiálu se připravují kvalitní tenké vrstvy (Pulse Laser Deposition, zkr. PLD). Laserové plazma může posloužit jako zdroj vysoce nabitých energetických iontů využitelných např. pro implantaci do povrchů nebo injektáž do urychlovače. Tzv. horké husté plazma je intenzivním zdrojem krátkovlnného záření. Dalším zajímavým projevem ablace je působení repulzivních sil na ozářené těleso. Jsou testovány možnosti, jak tohoto působení využít při odklizení smetí na orbitálních drahách nebo k reaktivnímu pohonu těles [4]. Důležitou úlohu hraje ablace také v problému jaderné fúze s tzv. inerciálním udržením (Inertial Confinement Fusion, zkr. ICF). V některých případech je ablace jevem nechtěným, např. poškozují-li optické elementy výkonných laserových systémů nebo vnitřní stěny ICF reaktorů. Znalost mechanismů ablace pomáhá zvyšovat odolnost ohrožených povrchů.

Výzkum laserové ablace již téměř půl století sleduje rozvoj laserové technologie. Typickým příkladem je dnešní trend využívat stále kratší vlnové délky. Zatímto laserová ablace v infračervené, viditelné nebo ultrafialové oblasti spektra si již našla cestu do nejrůznějších aplikací, výzkum ablace vyvolané zářením o vlnových délkách kratších než 100 nm (eXtreme UltraViolet, zkr. XUV) je teprve v začátcích.

Právě o laserech v této nové oblasti a jimi indukované ablaci pojednává má disertační práce. Téma je součástí širšího výzkumu interakce různých materiálů s krátkovlnným zářením koherentních i nekoherentních zdrojů, který již několik let probíhá na Fyzikálním Ústavu AV ČR. Experimentální zázemí tomuto projektu poskytly pražská laboratoř PALS (Prague Asterix Laser System) a několik laserových výzkumných center v zahraničí (CEA Saclay ve Francii, HASYLAB/DESY v SRN, Colorado State University ve Fort Collins, USA).

To, zda a jaké praktické uplatnění nalezne ablace v XUV oboru, se pravděpodobně ukáže až časem. Již nyní však budí pozornost jako možný nástroj při vytváření nanostruktur. Zkrácení vlnové délky posouvá difrakční limit a přináší možnost zobrazovat a ablaovat struktury s menšími detaily. Z důvodu rozlišení jsou do XUV oboru přenášeny i standardní litografické techniky, sestávající na rozdíl od ablace z více kroků.

Při popisu obrázku 1.1 se úmyslně vyhýbáme termínům „tavení“ a „vy-

pařování“, neboť jsou úzce spojeny s představou vyšších teplot. Ukázalo se, že v některých případech (např. při ablaci polovodičů ultrakrátkými laserovými pulzy nebo ablaci polymerů UV zářením) hrají v ablaci důležitou roli procesy netermální povahy. Lze očekávat, že při poškození látky působením fotonů s energií značně přesahující energii vazeb mohou netermální procesy převládnout.

Předkládaná práce je rozdělena do sedmi kapitol. Důležitým vodítkem v začínajícím výzkumu XUV ablace je srovnání s dlouhovlnnou ablací, tj. ablací vyvolanou ultrafialovým (UV), viditelným (VIS) a infračerveným (IR) zářením. Se základními rysy dlouhovlnné ablace se seznámíme ve druhé kapitole. Ve třetí kapitole vysvětlíme, proč a jaké změny vnáší do výzkumu ablace využití XUV záření. Jde o změny v základních mechanismech a interakcích záření s hmotou. Dále se seznámíme s principy některých typů XUV laserů, konkrétně s lasery emitujícími z horkého hustého plazmatu, lasery na volných elektronech a svazky vysokých harmonických frekvencí. Čtvrtá kapitola definuje cíle disertační práce. Jednotlivé experimenty, provedené na různých XUV zdrojích, a postupy použité pro analýzu povrchů jsou popsány v kapitole páté. Výsledky vědecké práce jsou s odkazy na příložené publikace prezentovány v kapitole šesté. Závěrečná sedmá kapitola shrnuje dosažené výsledky a diskutuje jejich význam.

Na konci práce je umístěn seznam odkazů na použitou literaturu ([1], [2], ...). Samostatný seznam je věnován odkazům na práce, na nichž jsem se podílel ([A1], [A2], ...), a nejdůležitější z těchto prací jsou zařazeny do příloh.

Kapitola 2

Ablace dlouhovlnným (UV-VIS-IR) zářením

Zde jsou shrnuty základní poznatky o laserové ablaci, vyvolané zářením konvenčních laserů, pracujících v ultrafialovém (UV), viditelném (VIS) a infračerveném (IR) oboru.

2.1 Základní popis ablace

Pro základní výzkum ablace a většinu aplikací se využívají pulzní lasery. Tabulka 2.1 podává výčet nejčastěji používaných typů. Pro UV oblast jsou typické plynové excimerové lasery (F_2 , ArF, ...). Velmi často se využívají různé harmonické frekvence pevnolátkového Nd:YAG laseru. Nejrozšířenějším laserem s ultrakrátkými pulsy je Ti:safírový laser.

Laserový pulz je popsán svou vlnovou délkou λ , dobou trvání τ a energií E . Při soustředění pulzu do stopy o ploše S lze vyčíslit tzv. fluenci $\Phi = E/S$ [J/cm^2] nebo intenzitu $I = \Phi/\tau$ [W/cm^2]. Rychlost ablace se nejčastěji měří hloubkou krátera d připadající na jeden laserový pulz, tj. $d =$ hloubka krátera / počet pulzů.

Důležitou vlastností ablace je, že nastává až při překročení jisté prahové fluence Φ_{th} . Pro fluence nižší než Φ_{th} dochází také k úbytku ozářené látky, ale jen po jednotlivých atomech či molekulách. Takový proces se označuje jako desorpce. Pro fluence vyšší než Φ_{th} dostává poškození kolektivní ráz a látka může odlétávat v clusterech nebo kapkách. Podle Haglunda [5] leží hranice mezi mikroskopickou desorpcí a makroskopickou ablací přibližně u $d=1/2$ tloušťky atomové vrstvy na 1 laserový pulz.

Často se v literatuře pro odhad prahu užívá jednoduchý model, navržený původně pro popis fotochemického leptání polymerů: Nechtě x je vzdálenost

| laser | vlnová délka | délka pulsu |
|----------------|--|------------------------|
| F ₂ | 157 nm | jednotky až desítky ns |
| ArF | 193 nm | |
| KrF | 248 nm | |
| XeCl | 308 nm | |
| Nd:YAG | 1064 nm (1 ω), 532 nm (2 ω) 355 nm (3 ω) ; 266 nm (4 ω) | jednotky až desítky ns |
| Ti:safír | okolo 800 nm | jednotky až desítky fs |

Tabulka 2.1: Lasery často používané ve výzkumu laserové ablace. Symboly 2 ω , 3 ω , ... značí harmonické frekvence laseru.

měřená od povrchu dovnitř látky. Je-li absorpční koeficient materiálu α homogenní a neměnný, fluence záření uvnitř látky se zmenšuje exponenciálně jako $\Phi(x)=\Phi(0).\exp(-\alpha.x)$. Za předpokladu, že bude odstraněn všechen materiál $x < d$ prosvícený zářením o fluenci $\Phi(x) > \Phi_{th}$, dostaneme pro hloubku kráteru odhad (2.1).

$$d = \frac{1}{\alpha} \ln\left(\frac{\Phi}{\Phi_{th}}\right) \quad (2.1)$$

Tento model nezahrnuje jeden důležitý aspekt laserové ablace. Jak na absorpční koeficient, tak na práh ablace má vliv délka laserového pulzu. Na femtosekundové časové škále dochází k excitacím elektronových stavů nebo iniciaci fotochemických reakcí, a tím i změnám optických vlastností (odrazivost, absorpce). Pomaleji, na škále pikosekund, dochází k předání energie atomové mříži a k jejímu ohřátí, natavení atd. Ještě pomaleji, během nanosekund a mikrosekund, se projevují hydrodynamické efekty jako pohyb taveniny po povrchu nebo expanze plazmatického oblaku. V souladu s úvodním obrázkem 1.1 může dlouhý laserový pulz interagovat s pevnou, kapalnou i plynnou fází. Jelikož jde o velmi rychlé excitace/relaxace materiálu, nezářídka dochází k přehřátí/podchlazení některé fáze. Při interakcích laserového svazku s plazmatem dochází ke ztrátám jeho energie (tzv. plasma-shielding), více str. 16.

Ukázalo se, že ozařováním mnoha pulzy někdy dochází ke zvýšení absorpčního koeficientu díky tvorbě nových absorpčních center (tzv. inkubační efekt). Tím může být spuštěna i ablace původně transparentních materiálů. Další možností je použít ultrakrátké laserové pulsy se špičkovou intenzitou dostatečnou pro nástup nelineárních vícefotonových absorpčních procesů.

2.2 Mechanizmy ablace

2.2.1 Ablace kovů a polovodičů nanosekundovými pulsy

Předpokladem laserové ablace je účinná depozice energie záření do tenké vrstvy látky. V počátcích, kdy byly nejrozšířenější nanosekundové lasery pracující ve viditelném až infračerveném oboru, se výzkum soustředil především na dobře absorbující látky, především kovy a polovodiče s úzkým zakázaným pásem. Na příkladu křemíku si nyní ukažme typické rysy této ablace.

Při nižších fluencích u křemíku dochází k povrchovému neexplozivnímu vypařování [6], kdy se sice kráter prohlubuje s rostoucí fluencí, ale skutečný vypařený objem roste pomaleji, neboť se tavenina vrší na okraji. Vnitřek kráteru přitom zůstává poměrně hladký a jeho okolí je čisté, bez zatuhlých vyvržených kapek. Pro vyšší fluence se mění charakter ablace. Vypařování jako by náhle získalo charakter exploze. Kráter se rychle prohlubuje a jeho vnitřní povrch je velmi členitý. Většina objemu je vyvržena, z části ve formě kapek, které opouští povrch několik μs po odeznění pulzu a kondenzují na okolním povrchu. V citovaném článku je explozivní režim spojován s tzv. homogenním vypařováním, nastávajícím při dosažení teplot blízkých teplotě kritické.

Podle jiných autorů [7, 8] se může podobnými příznaky projevovat i tzv. heterogenní vypařování za podmínek, kdy je teplota kritickému bodu vzdálena. Rozdíly mezi těmito druhy vypařování jsou diskutovány v práci [9]. Zatímco heterogenní vypařování je podmíněno přítomností nukleačních center, homogenní vypařování představuje spontánní přeměnu taveniny ve směs kapek taveniny a bublin páry v celém objemu, kde se teplota přiblížila kritické teplotě. V blízkosti kritického bodu se objevují fluktuace hustoty a pokud má taková fluktuace podobu bubliny větší než jistý kritický poloměr, začne spontánně růst. Přehřátá tavenina se tak stává metastabilní.

2.2.2 Ablace polymerů nanosekundovými pulsy

Se zavedením excimerových UV laserů v 80. letech nastal boom v ablací polymerů [10]. Ukázalo se, že UV zářením lze často vytvořit velmi čisté krátery bez známek tepelného poškození. To vedlo ke vzniku nové skupiny ablačních modelů, beroucích v potaz fotochemické rozkladné procesy. Představa ablace jako fotochemického leptání je dnes testována nejen u polymerů, ale také u dalších pevných látek molekulárního typu (molecular solids) [11]. Jde o pevné látky složené z molekul pospojovaných navzájem slabými silami. Zástupci této skupiny jsou nízkoteplotní (nebo Van der Waalsovské) kondenzáty některých plynů.

Počáteční víru v čistě fotochemický obraz ablace polymerů časem narušily poznatky svědčící o působení vysokých teplot a začaly se proto testovat fototermální [12] nebo fotomechanické [13] modely. Jak ukazují některé simulace [14], pokud je délka pulzu (ns) mnohem kratší než doba, za kterou se teplo šíří skrze absorpční zónu (thermal confinement), uplatňuje se v přehřáté látce již popsaná fázová exploze. Naproti tomu, mechanické tlakem vyvolané procesy jsou za destrukci materiálu zodpovědné tehdy, je-li délka pulzu (ps) mnohem kratší než doba, za kterou se skrze absorpční zónu dokáže šířit zvuková vlna (stress confinement).

2.2.3 Ablace femtosekundovými pulsy

Femtosekundová ablace se od nanosekundové ablace liší v několika směrech. Obecně pozorovaným efektem je snížení prahu ablace. Důvodem je především fakt, že depozice energie do povrchu probíhá mnohem rychleji než je tato energie vedena do objemu. Tím se dosahuje vyšší úrovně excitace materiálu v lépe ohraničené oblasti. Důsledkem je i lepší kvalita ablaovaného povrchu a jeho okolí.

Pro popis součinnosti excitačních a ztrátových procesů ve femtosekundové ablací kovů se používají modely uvažující odděleně teploty elektronového plynu a atomové mříže [15, 16]. Závislost hloubky kráteru na fluenci se chová jako kombinace dvou členů podobných rovnici (2.1). Pro nízké fluence dominuje člen $\delta \cdot \ln(\Phi/\Phi_{th}^\delta)$, kde δ je optická penetrační délka $1/\alpha$. Pro vyšší fluence dominuje člen $\tau \cdot \ln(\Phi/\Phi_{th}^\tau)$, kde τ je tepelná penetrační délka. Předpokládá se termální poškození.

Pro femtosekundovou ablací polovodičů se také většinou za primární důvod poškození považují termální efekty tavení a vypařování. Ukazuje se však, že na časové škále několika set femtosekund dochází k destabilizaci mříže už jen tím, že je znatelná část vazebných elektronů excitována do ne vazebných stavů [17, 18]. Tento efekt se označuje jako netermální tavení.

Při zvýšení intenzity záření na úroveň, kdy začínají působit nelineární absorpční efekty, např. vícefotonová absorpce, lze ablaovat i materiály transparentní v dané spektrální oblasti. Excitované elektrony se dostávají do vodivostního pásu, stávají se volnými a dále zesilují absorpci záření (free-electron heating). Některé z elektronů získají tolik energie, že mohou opustit povrch a ten se proto nabíjí a může se stát elektrostaticky nestabilní. Rozpad povrchu pod vlivem elektrostatických sil se nazývá Coulombická exploze a projevuje se např. závislostí hybnosti vyletujících iontů na jejich náboji [19].

2.3 Laserem indukované periodické struktury (LIPSS)

Někdy lze uvnitř nebo v těsném okolí ablačních kráterů nalézt periodické liniové struktury (Laser-Induced Periodic Surface Structures, zkr. LIPSS). Detailní popis vlastností LIPSS a přehled publikované literatury byl podán v článku [A1]. V zásadě se LIPSS dělí do dvou skupin:

2.3.1 LIPSS I. druhu

Jako LIPSS prvního druhu (LIPSS-I) nebo také koherentní se označují ty útvary, jejichž perioda a orientace jsou řízeny vlnovou délkou, polarizací a úhlem dopadu laserového svazku. S počtem akumulovaných laserových pulzů se jejich kvalita zlepšuje. Tato pozorování vedla k hypotéze, že za vznik LIPSS-I je odpovědná interference.

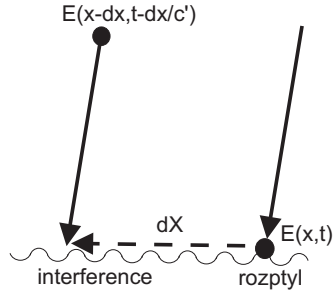
Nejjednodušší, ale často postačující představa [20] je taková, že šikmo dopadající TM-polarizovaná světelná vlna se rozptyluje na nehomogenitách povrchu a na existujících LIPSS. Interferencí s vlnou rozptýlenou podél povrchu v dopředném resp. zpětném směru vznikají povrchové mřížky s periodami Λ dle rovnice 2.2, kde n , λ , θ jsou index lomu povrchu, vlnová délka a úhel dopadu laseru. K vysvětlení odchylek od těchto základních pozorování bylo nutno použít složitější modely, např. rozptyl do všech povrchových směrů přímo z elektromagnetické teorie [21] nebo rozptyl na dynamických poruchách [22].

Naprosto zásadní pro růst LIPSS je, aby interference způsobená rozptylem na existující povrchové mřížce či vlně podporovala dále její růst - musí mít stejnou periodu a podobnou fázi. Musí tedy existovat pozitivní zpětná vazba stejně jako např. u stimulovaných rozptylů laseru na vlnách v plazmatu (stimulovaný Ramanův a Brillouinův rozptyl).

$$\Lambda = \frac{\lambda}{n \cdot (1 \pm \sin(\alpha))} \quad (2.2)$$

Pro vznik LIPSS 1. druhu je důležitá koherence laseru. Tímto vlivem se literatura běžně nezabývá, protože konvenční lasery mají příčnou i podélnou složku koherence dostatečnou. U XUV laserů to obecně neplatí, neboť nemají rezonátor a jejich pulzy se formují ze šumu.

Jak snadno nahlédneme v obrázku 2.1, pro rovnoměrné pokrytí nějaké plochy těmito strukturami je žádoucí, aby charakteristické délky příčné i podélné koherence dosahovaly alespoň rozměrů této plochy. Záření $E(x, t)$ se rozptyluje, šíří se podél povrchu po vzdálenosti dx a interferuje se zářením



Obrázek 2.1: Interferenční schéma vzniku LIPSS 1.druhu

$E(x - dx, t - dx/c')$, kde E symbolizuje elektrické pole, x polohu napříč vzorkem, t čas, c' rychlost světla v povrchové vrstvě materiálu. Interferenční obrazec a tedy i modulace energie deponované do povrchu mají velký kontrast, pokud jsou příčná i podélná koherenční délka alespoň srovnatelné s dx .

2.3.2 LIPSS II. druhu

LIPSS druhého druhu (LIPSS-II) nebo také "nekoherentní" je označení pro útvary, jež nelze zařadit do skupiny LIPSS-I, protože vykazují závislosti periody na jiných experimentálních parametrech, jako jsou délka laserového pulzu, lokální intenzita nebo expozice povrchu, vnitřním napětí uvnitř materiálu apod. V literatuře byly v této souvislosti diskutovány jevy jako zamrzlé akustické a kapilární vlny, termokapilární a Kelvin-Helmholtzova nestabilita. Diskuse těchto jevů vychází zpravidla z odvozených disperzních relací, např. ze vztahu 2.3 [23] pro kapilární vlny na povrchu nestlačitelné a nevířivé kapaliny. Úhlová frekvence kmitů ω zde závisí na vlnovém čísle $k = 2/\Lambda$, veličiny γ značí povrchové napětí, ρ hustotu a h hloubku kapaliny.

$$\omega^2 = \frac{\gamma}{\rho} k^3 \tanh(kh) \quad (2.3)$$

Je-li úhlová frekvence vln závislá na efektivní době interakce nebo délce laserového pulzu, přenáší se tento vliv podle 2.3 i do periody vln Λ .

Kapitola 3

Ablace XUV zářením

V první kapitole této práce byly ukázány různé podoby ablace indukované dlouhovlnným (UV-VIS-IR) zářením. Jde o experimentální výsledky sesbírané za několik desítek let tak, jak se postupně rozšiřovaly možnosti laserů a diagnostických metod.

V posledních letech se pozornost obrací k ještě kratším vlnovým délkám. Předkládaná práce se zabývá oborem označovaným jako XUV, ve kterém se prolínají extrémní ultrafialová (EUV) a měkká rentgenová oblast. Tato spektrální oblast, rozkládající se zhruba mezi vlnovými délkami 1 a 100 nm, je charakteristická velmi účinnou absorpcí/fotoionizací většiny látek.

| prvek | Ionizační práh [eV ; nm] | Ionizace vnitřních slupek [eV ; nm] |
|-------|-------------------------------|--|
| H | 13,6 eV ; 91,2 nm | |
| C | 11,3 eV ; 110,1 nm | K 284 eV ; 4,4 nm |
| N | 14,5 eV ; 85,3 nm | K 402 eV ; 3,1 nm |
| O | 13,6 eV ; 91,1 nm | K 537 eV ; 2,3 nm |
| Si | 8,2 eV ; 152,1 nm | K 1839 eV ; 0,7 nm L1 118 eV ; 10,5 nm L2 100 eV ; 12,4 nm L3 99 eV ; 12,5 nm |

Tabulka 3.1: Ionizační energie elektronů valenčních (vlevo) a vnitřních (vpravo) slupek neutrálních atomů vybraných prvků.

V tabulce 3.1 jsou uvedeny energie ionizačních prahů [24] a ionizací vnitřních slupek neutrálních atomů vybraných prvků [25]. Energie XUV fotonu typicky postačuje k ionizaci valenční vrstvy a při vyšších energiích i nej-svrchnější nevalenční slupky atomu (K slupka pro prvky C,N, O z 1. periody,

L slupka pro prvky jako Si z 2. periody atd.). Tyto ionizace mají zpravidla větší účinné průřezy než jednofotonové optické přechody uvnitř elektronového obalu v dlouhovlnné oblasti a fotoionizace způsobené tvrdým rentgenovým zářením. Praktickým důsledkem této vlastnosti je nutnost pracovat s XUV zářením ve vakuu a obejít se bez prvků refraktivní optiky.

Fotoionizaci a další interakční procesy, které mohou v procesu XUV ablace sehrát důležitou roli, rozebereme v části 3.1. S principy XUV laserů se seznámíme v oddílu 3.2. V poslední části 3.3 je podán přehled dosavadních poznatků o XUV ablaci, s výjimkou našich výsledků prezentovaných později v kapitole 6.

3.1 Interakční procesy

3.1.1 Fotoionizace

Fotoionizace je dominantním absorpčním procesem fotonů s energií 50 eV - 30 keV, tj. v části XUV spektra s vlnovými délkami kratšími než 25 nm. Vliv meziatomárních vazeb se zde obvykle zanedbává a celkový účinný průřez absorpce molekuly nebo kondenzované látky se bere jako součet účinných průřezů fotoionizace izolovaných atomů [26].

Některé teorie vychází z klasického popisu elektronového obalu jako soustavy oscilátorů s vlastními rezonančními frekvencemi ω_s , silami oscilátoru g_s a tlumením γ [27]. Interakce atomu a záření s frekvencí ω je popsána tzv. atomovým rozptylovým faktorem, definovaným formulí (3.1). Z jeho imaginární části lze vyčíslit účinný průřez fotoionizace pro daný atom dle vztahu (3.2), kde r_e je klasický poloměr elektronu a λ je vlnová délka. Pro směs atomů různých prvků s koncentracemi n se nakonec účinné průřezy sčítají dle rovnice (3.3). Na základě velkého množství experimentálních dat byly sestaveny Henkeho tabulky [26] atomových faktorů f^0 .

$$f^0(\omega) = \sum_s \frac{g_s \omega^2}{\omega^2 - \omega_s^2 + i\gamma\omega} = f_1^0(\omega) - i f_2^0(\omega) \quad (3.1)$$

$$\sigma_{abs} = 2r_e \lambda f_2^0(\omega) \quad (3.2)$$

$$\alpha = \sum_k n_k \sigma_k \quad (3.3)$$

Pro vlnové délky delší než 25 nm musíme optické konstanty určené z Henkeho tabulek [26] brát jako orientační, neboť mohou být silně ovlivněny

vazbami příslušného atomu. Platnost výše popsaného přístupu byla potvrzena např. při měření výtěžku fotoionizace fullerenu C₆₀ [28], absorbance polymerních fotoresistů [29] nebo transmise svazků XUV laserů tenkými hliníkovými filtry [30].

3.1.2 Interakce XUV záření s plazmatem

Při ablaci dlouhovlnným zářením hrají interakce mezi volnými elektrony a laserovým polem důležitou roli u kovů nebo pokud dochází ke vzniku plazmatu. Velké množství energie je deponováno v okolí tzv. kritické plochy, kde je elektronová hustota plazmatu rovna kritické hustotě definované podle formule (3.4), kde ω je úhlová frekvence záření, ϵ_0 je permitivita vakua, m_e a e jsou hmotnost a náboj elektronu. V blízkosti kritické plochy dominují pro dlouhovlnné záření procesy kolizní (inverse bremsstrahlung) a rezonanční absorpce. Při vysokých intenzitách elektrického pole se přidávají další nelineární jevy jako Ramanův nebo Brillouinův rozptyl. Nezanedbatelné množství laserového záření se od kritické plochy odráží zpět.

$$n_c = \frac{\omega^2 \epsilon_0 m_e}{e^2} \quad (3.4)$$

Pro XUV záření se kritická plocha, pokud se vůbec vytvoří, bude nalézat blízko při povrchu nebo uvnitř ionizovaného terče. Pravděpodobně též dojde k oslabení všech absorpčních procesů typických pro dlouhovlnnou oblast [31] a dominantním procesem se stane fotoionizace neutrálních atomů i iontů. Jedním z důvodů je, že účinnost kolizní absorpce a výše zmíněných nelineárních procesů roste se součinem intenzity záření a druhé mocniny vlnové délky, viz [32].

Pokud dojde k tak výraznému potlačení absorpce záření v elektronovém plynu vznikajícího plazmatu, může nastat zajímavá situace. Energie záření bude účinně využita k ionizaci terče a k ohřevu plazmatu bude docházet termalizací fotoelektronů. Výsledkem může být vysoce ionizované plazma relativně nízké teploty. Pokud se těmito vlastnostem přidá vysoká hustota plazmatu (zvláště při působení ultrakrátkých XUV pulzů), zesílí vzájemné elektrické působení nabitých částic na úroveň srovnatelnou s kinetickou energií tepelného pohybu. Touto vlastností by se plazma vytvořené XUV lasery řadilo mezi neideální silně korelovaná plazmata označovaná souhrnně jako Warm Dense Matter, vyplňující nitra chladných hvězd a plyných planet.

Při výzkumu interakce ultraintenzivního XUV záření s clusterem vzácných plynů byla prokázána v těchto clusterech velmi silná absorpce, kterou se nepodařilo vysvětlit pomocí klasických absorpčních modelů [33, 34]. Bude

zajímavé zjistit, zda je tento nárůst absorpce ovlivněn rozměrem clusteru, tj. zda se neuplatňuje také v objemové látce.

3.1.3 Sekundární elektrony, kaskády

V důsledku fotoionizace krátkovlnným zářením se může uvolnit elektron, který má dost energie na to, aby látku dále ionizoval. V případě, že je látka ionizována tvrdým XUV nebo rentgenovým zářením, nemusí jít jen o fotoelektron, ale také o Augerův elektron. Výpočty ukazují, že elektrony s energií v řádech stovek eV iniciují v kondenzované látce kaskády čítající až desítky sekundárních elektronů [35, 36]. Kaskáda se vyvíjí po dobu desítek fs, po kterou je energie distribuována ve stále větší počet elektronů o snižující se energii. Může se tak stát, že skutečný rozsah ionizace povrchu bude mnohem vyšší, než by vyplývalo z výpočtů části 3.1.1. Na druhou stranu, výpočty [35, 36] vycházejí z elektronické struktury neionizované látky, takže nelze automaticky přejímat jejich výsledky do situace, kdy je povrch ionizován / ablaován velmi intenzivním XUV. Pomalé fotoelektrony generované měkkým XUV zářením a finální elektrony kaskády látku neionizují, ale mohou způsobovat různé typy elektronických excitací, štěpit vazby apod. Pokud část elektronů opustí oblast interakce, může mít na průběh ablace vliv vznikající elektrické pole (field effects).

3.1.4 Radiačně-chemické reakce

Při ozáření molekulárních látek XUV fotony dochází k iniciaci radiačně chemických změn. Technicky důležitým případem jsou organické polymery. Dochází u nich ke dvěma základním typům reakcí: k přerušování polymerních řetězců (chain scission) a naopak jejich zesílení (cross-linking), kdy se původně nezávislé řetězce spojují kovalentními vazbami do trojrozměrné sítě [37].

První z procesů vede k narušení materiálu a snížení jeho odolnosti vůči dalšímu ozáření, druhý odolnost materiálu vůči záření posiluje. Ukazuje se, že poměr mezi oběma procesy je řízen např. teplotou látky, intenzitou ozařování a vlnovou délkou [38].

3.2 Principy XUV laserů

3.2.1 Lasery v horkém hustém plazmatu

Relativně nejpodobnější konvenčním laserům (lasery, v nichž je aktivní médium atomární či molekulární povahy umístěno uvnitř optického rezonátoru)

jsou XUV lasery využívající horké a husté plazma [27]. Vysoká teplota (desítky, stovky eV) v kombinaci s vysokou hustotou elektronového plynu v tomto typu plazmatu vede k vysoké, nebo úplné ionizaci. Při interakcích volných elektronů (bremsstrahlung, rekombinace) s ionty pak dochází k emisi XUV záření se spojitým spektrem, naopak diskretní linie jsou důsledkem přechodů mezi diskretními stavy iontů.

První XUV lasery generované v horkém hustém plazmatu byly realizovány již v roce 1984. Teoretické a experimentální výsledky získané od té doby lze najít přehledových článkách [39, 40, 41]. Mezi základní podmínky pro emisi koherentního XUV záření z plazmatu patří existence početné populace iontů s inverzním obsazením elektronových hladin, vhodná dynamika čerpání a geometrie plazmatu.

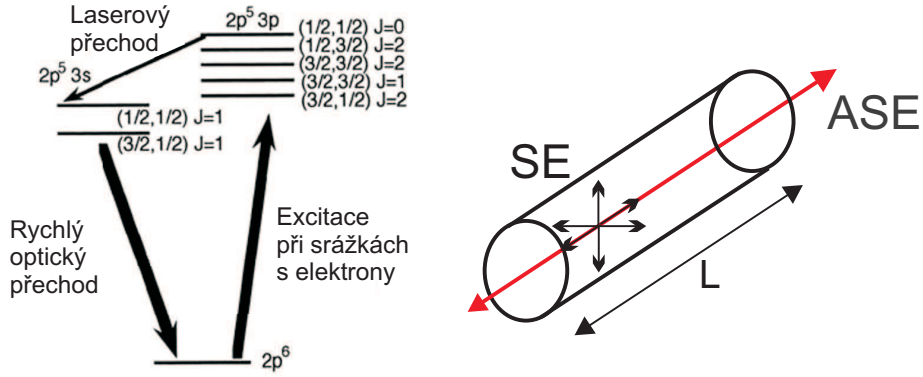
Horké husté plazma mívá vysoký stupeň ionizace a obsahuje ionty s různými náboji. Vhodné jsou ionty s uzavřenými valenčními slupkami, které jsou díky své vyšší ionizační energii odolnější vůči další ionizaci než jiné typy iontů. Proto se vyskytují v plazmatu ve vyšších koncentracích [39]. Označují se podle počtu elektronů jako heliu-podobné ($2e^-$), neonu-podobné ($10e^-$) atd. Vodíku-podobný iont ($1e^-$) vzniká rekombinací atomového jádra v úplně ionizovaném plazmatu. Schémata pro vytvoření a čerpání inverze obsazení elektronových hladin těchto iontů jsou popsána v práci [39].

Při našich výzkumech jsme použili lasery čerpané v tzv. kolizním schématu s neonu-podobnými ionty (konkrétně ionty argonu a zinku). Jak je obecně znázorněno na obrázku 3.1 vlevo, ionty těchto typů jsou excitovány ve srážkách s elektronovým plynem ze základního stavu $2p^6$ do stavu $2p^5 3p$, přičemž optický přechod mezi těmito hladinami je zakázán výběrovými pravidly. Inverze obsazení nastává mezi hladinou $2p^5 3p$ a níže položenou hladinou $2p^5 3s$, která je rychle vyprazdňována optickými přechody do základního stavu $2p^6$.

Kinetická rovnici (3.5) popisuje absorpci/emisi fotonů při přechodech mezi dvěma energetickými hladinami. Veličiny A_{21} , B_{21} a B_{12} jsou známé Einsteinovy koeficienty pro spontánní emisi, stimulovanou emisi a absorpci. Veličiny n , N_1 a N_2 jsou hustota fotonů a koncentrace částic v horním (2) a dolním (1) stavu.

Z rovnice (3.6) je zřejmé, že pro XUV oblast se stává problémem extrémně rychlá spontánní emise. Stimulovaná emise se začíná výrazněji uplatňovat až při dostatečně vysokých hustotách XUV fotonů, emitovaných spontánní emisí.

$$\frac{dn}{dt} = N_2 \cdot A_{21} + n \cdot N_2 \cdot B_{21} - n \cdot N_1 \cdot B_{12} \quad (3.5)$$



Obrázek 3.1: Vlevo) Kolizní čerpací schéma s neonu-podobnými ionty, převzato z [39]. Vpravo) Schéma procesu ASE.

$$A_{21} = B_{21} \cdot \frac{8\pi h}{\lambda^3} \quad (3.6)$$

Základní geometrie plazmatu XUV laseru je lineární, viz obrázek (3.1) vpravo. Spontánní emise SE vyzařuje do všech směrů, avšak v podélném směru plazmatu se z tohoto záření formuje XUV pulz, zesilovaný stimulovanou emisí. Tento proces se označuje jako ASE (Amplified Spontaneous Emission). Intenzita laserové čáry roste podle rovnice (3.7) s délkou plazmatického sloupce L [41], dokud stimulovaná emise nezačne zdatelně vyčerpávat populaci iontů ve vzbuzeném stavu. Tento stav se označuje jako saturace zisku. Veličina g je zisk malého signálu a E je konstanta úměrná úhrnné spontánní emisi v podélném směru.

$$I = (E/g)(e^{gL} - 1)^{3/2}(gL e^{gL})^{-1/2} \quad (3.7)$$

Laboratorní plazmatické útvary požadovaného typu rychle zanikají a pro jejich přípravu je nutno uvolnit do látky velké množství energie v krátkém okamžiku. Prvním způsobem přípravy je užití výkonného pulzního laseru (zpravidla IČ nebo Vis), soustředěného na terč astigmatickou fokusační soustavou (s válcovou optikou). Kvůli rychlé spontánní emisi prochází XUV pulz plazmatem pouze jednou nebo dvakrát při použití zrcadla umístěného kolmo na plazmatický sloupec [42]. Zisk aktivního média proto musí být o dva až tři řády vyšší než u konvenčních laserů.

Pokud není lineární plazma válcově symetrické, jako např. při ionizaci objemového terče, nastává problém s gradientem indexu lomu, který vyvádí

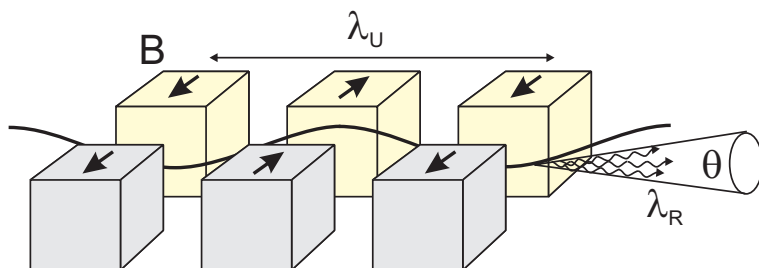
vznikající XUV svazek ven z oblasti plazmatu o optimálních podmínkách. Tento problém lze redukovat zakřivením terče nebo jinými metodami [41].

Čerpání XUV laseru jediným svazkem výkonného laseru je málo efektivní a drahé. Výhodné se ukázalo být použití dvou čerpacích pulzů – jednoho pro vytvoření a druhého pro čerpání plazmatu [42]. Jiná, ještě efektivnější schémata, využívají krátké pikosekundové čerpací pulzy [43]. Tím se posunují možnosti přípravy XUV laserů na úroveň dostupnějších, téměř stolních laserových systémů.

Alternativou k čerpání laserem, poskytující levnější a kompaktní řešení, jsou z-pinčové výboje v kapiláře [41]. Horké husté plazma vytvořené z plynu naplňující kapiláru je stlačeno v radiálním směru vlastním magnetickým polem (z-pinč). Aktivním médiem může být také materiál odablaovaný výbojem ze stěn kapiláry.

3.2.2 Lasery na volných elektronech

Produkce subpikosekundových XUV pulzů je doménou laserů na volných elektronech (Free Electron Laser, zkr. FEL). Jejich základním prvkem je tzv. undulátor - periodická soustava statických magnetů s příčnou orientací (viz Obr. 3.2). energii do undulátoru přináší svazek relativistických elektronů a po rokmitání v magnetickém poli část své energie předává elektromagnetickému poli.



Obrázek 3.2: Kmitání relativistického elektronového svazku v periodickém magnetickém poli undulátoru.

Na synchrotronech se undulátory využívají pro generaci nekoherentního, avšak směrového a téměř monochromatického záření, které je emitováno do kuželu rozevřeného do úhlu θ a s vlnovou délkou λ_R , viz rovnice (3.8) a (3.9) [27]. V obou rovnicích vystupují známý relativistický faktor γ (poměr celkové a klidové energie elektronu $\gamma = E/m_0c^2$) a undulátorový parametr K , definovaný podle (3.10). Veličiny λ_u a B představují periodu a indukci

magnetického pole, m_o a c jsou hmotnost elektronu a rychlost světla. Z uvedených relací je zřejmé, že mezi výhody undulátoru jako zdroje záření patří jeho proladitelnost prostřednictvím parametrů γ a K .

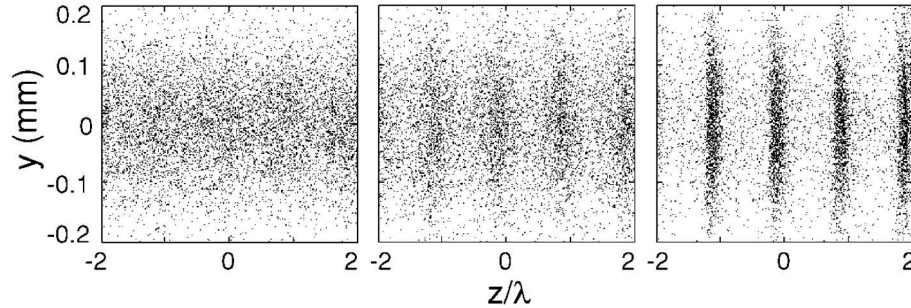
$$\theta \cong \frac{K}{\gamma} \quad (3.8)$$

$$\lambda_R = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2}\right) \quad (3.9)$$

$$K = \frac{eB\lambda_u}{2\pi m_o c} \quad (3.10)$$

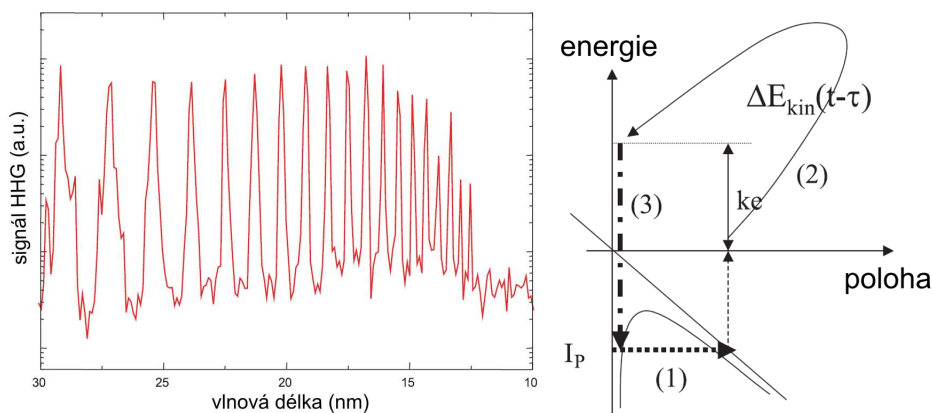
V synchrotronu je emitováno nekoherentní záření s intenzitou úměrnou počtu elektronů, neboť tyto jsou ve svazku rozprostřeny rovnoměrně nebo v dlouhých pulzech. Pokud však dojde k seskupení elektronů do shluků o délce kratší než je vlnová délka záření, vyzařují koherentně a s intenzitou úměrnou druhé mocnině počtu elektronů. Tento proces zvaný "micro-bunching" je klíčový pro funkci laseru na volných elektronech. Za vhodných podmínek k němu dochází působením záření [44].

Představme si situaci, kdy je undulátor vložen do rezonátoru nebo jím prochází svazek jiného laseru. Je-li průměrná hodnota parametru γ elektronů ve svazku mírně vyšší, než by podle (3.9) odpovídalo dominantní vlnové délce, dochází k transferu energie do záření a vzniku/prohlubování výše popsané modulace elektronové hustoty (viz Obr.3.3). Jelikož je rychlost tohoto procesu úměrná počtu fotonů, lze jej chápat jako druh stimulované emise.



Obrázek 3.3: Simulace změn v elektronovém svazku od fáze spontánní emise u vstupu undulátoru (vlevo), přes fázi exponenciálního zesílení (uprostřed) po saturaci zisku u výstupu z undulátoru (vpravo). Převzato z [45].

Výše zmíněný princip popisuje funkci FEL pracujících v infračervené až ultrafialové oblasti. Při přechodu do XUV a rentgenové oblasti není ani rezonátor ani jiný vhodný XUV laser k dispozici. Řešením v této oblasti jsou



Obrázek 3.4: (Vlevo) Spektrum vysokých harmonických frekvencí generovaných v neonu pulzy 50 fs, 800 nm. (Vpravo) Semiklasický model generace: 1) tunelová ionizace, 2) urychlení elektronu v poli záření, 3) zářivá rekombinace s iontem. Převzato z [47].

jedno-průchodové undulátory s velmi vysokým zesílením (high-gain FEL). Elektronové svazky v nich vykazují kolektivní nestabilitu, vedoucí k exponenciálnímu zesílení původně šumového záření, spontánně emitovaného v okolí rezonanční vlnové délky (3.9). Tento proces je nazýván "Self Amplified Stimulated Emission", zkráceně SASE. Fakt, že vstupním signálem je spontánní šum, se odráží v mnoha vlastnostech svazky SASE FEL, např. nízké časové koherenci záření. Více se o procesu SASE a krátkovlnných FEL lze dozvědět v práci [45] a odkazech tam uvedených.

3.2.3 Svazky vysokých harmonických frekvencí

Konverze základní frekvence výkonného laseru do celočíselných násobků, tzv. harmonických frekvencí, je proces známý od 60. let minulého století. Je způsobena nelineární odezvou (polarizací) látky na elektrické pole procházejícího záření [46].

Původně byla známa jen slabá forma tohoto procesu, kdy je nelineární polarizace malou poruchou vzhledem k lineární polarizaci prostředí. V tom případě účinnost konverze do n -té harmonické frekvence rychle klesá s násobkem n .

Od 80. let je známa silná forma, na kterou nelze nahlížet jako na poruchu. Harmonické frekvence jsou při ní generovány do vysokých lichých řádů. Jak je patrné ze spektra na obrázku 3.4 vlevo, účinnost konverze se mění pomalu přes mnoho řádů a k jejímu poklesu dochází náhle [47]. Pro tento proces se

vžilo označení generace vysokých harmonických (High Harmonic Generation, dále jen HHG). Praktická realizace spočívá v soustředění ultraintenzivního femtosekundového laseru do prostředí vzácného plynu [48]. Semiklasický model vysvětluje generaci HHG (viz Obr. 3.4 vpravo) jako důsledek zářivé rekombinace iontu s elektronem, který z něj byl předtím uvolněn tunelovou ionizací a urychlen v laserovém poli.

Kromě faktu, že spektrum HHG může zasahovat hluboko do XUV oboru, jsou z hlediska ablace neméně zajímavé časové vlastnosti. V jedné periodě čerpacího záření (2,7 fs pro 800 nm záření) jsou generovány dva záblesky XUV záření, jejichž délka a frekvenční složení závisí na detailním časovém průběhu elektrického pole čerpacího záření. Za vhodných podmínek může délka těchto záblesků klesnout až na úroveň stovek attosekund.

Svazek HHG vykazuje koherenční vlastnosti blízké vlastnostem čerpacího laseru [48], protože jediným náhodným procesem při generaci HHG je tunelová ionizace. Výhodné je proto použít HHG jako vstupní svazek zesilovače s horkým hustým plazmatem [49] nebo FEL zesilovače [50].

3.3 XUV ablace pevných látek

Na tomto místě uvádím přehled prací o laserové XUV ablaci, které byly doposud publikovány, s výjimkou našich vlastních publikací zmíněných v následujících kapitolách. Vzhledem k jejich relativně nízkému počtu se cenným doplňkem experimentů s fokusovanými laserovými svazky (viz tabulka 3.2) stávají obdobné experimenty využívající nekoherentní zdroje z horkého hustého plazmatu (viz tabulka 3.3). V obou případech jde často o prvotní experimenty, mající za cíl otestovat vhodné experimentální postupy pro XUV obor. Zmíňme několik praktických otázek, které byly řešeny.

Je prokazatelné, že byla ablace vyvolána XUV zářením? Tato otázka je obzvláště důležitá pro širokopásmové nekoherentní zdroje z tabulky 3.3, ale nelze jí pominout ani u zdrojů laserových, pokud využívají horké husté plazma. K důkazu se využívají filtry zeslabující buď XUV záření nebo zbytek spektra [58, A2, 60].

Jak nejlépe kontrolovat fluenci záření? Nabízejí se dva způsoby: a) použít filtr, nejčastěji tenkou fólii, b) měnit vzdálenost vzorku od ohniska fokusační soustavy laseru nebo od bodového zdroje [A2, 54]. Většinou se využívá posuv vzorku, neboť je tak možno dosáhnout menších a přesnějších změn ve fluenci než užitím zeslabujících filtrů. U fokusovaných laserových svazků však při tomto pohybu může dojít ke značným změnám v rozložení intenzity na

| zdroj | materiál | pozorování |
|---|--------------------|---|
| SASE laser na volných elektronech 89 nm; 30 - 100 fs | různé Si a-C | [51] [52] [53] |
| laser v kapilárním výboji 46,9 nm ; 1,2 ns | kovy | [54] |
| SASE laser na volných elektronech 32 nm ; 25 fs | PMMA Si, GaAs | [55] časově rozlišená mikroskopie [56] |

Tabulka 3.2: Vybrané práce o ablaci zářením XUV laserů.

| zdroj | materiál | pozorování |
|---|--------------------------------------|---|
| emise z Ta plazmatu na pevném terči 40 - 200 eV ; 7 ns | SiO ₂ | ablace přes kontaktní masku s μm [57] a 10 nm [58] rozlišením |
| emise z Xe plazmatu plynového terče 10 nm; 3 ns | PTFE | ablace přes kontaktní masku s μm rozlišením, zvýšení účinnosti ablace s rostoucí teplotou [59] |
| emise z Xe plazmatu plynového terče 1 - 8 nm; 0.5 ns | PMMA, PI a PTFE PTFE Si a PMMA | ablace přes kontaktní masku [A2] [60] [61] |

Tabulka 3.3: Vybrané práce o ablaci nekoherentním XUV zářením.

průřezu svazku (difrakce, aberace) a ve výsledku ke změně tvaru kráteru [52]. Nicméně, poslední generace laserů na volných elektronech již produkuje kvalitní Gaussovský výstupní svazek [55] a disponuje plynovými attenuátory pro regulaci energie v pulzu.

Jak číselně určovat fluenci záření? Tento problém je slabším místem ve výzkumu laserové XUV ablace. V dnešní době jsou sice dostupné vhodné detektory XUV záření (diody, bolometry), ale problémem zůstává rozdělit svazek na část určenou pro aplikace a část určenou pro diagnostiku. Často je nutné spoléhat se na stabilitu laseru a využívat hodnoty změřené v nezávislém měření. Zajímavým řešením jsou plynové [62] nebo drátkové [63] detektory energie svazku. Ve výhodě jsou nekoherentní bodové XUV zdroje z tabulky

3.2, kde se ablační a diagnostická měření provádějí současně.

Jak číselně určovat hloubku ablačních kráterů? Zde je opět situace jednodušší u nekoherentních bodových zdrojů, neboť hloubka struktur vyablaovaných za clonící maskou [57, 59, A2] je konstantní. U laserů bývá tvar kráteru v blízkosti ohniska nepravidelný [52] a tak se používá, podobně jako ve většině prací o konvenční ablacii, největší změřená hloubka kráteru.

Pro zmíněné experimenty byly vybrány především materiály dobře známé a prozkoumané v dlouhovlnné oblasti, např. křemík, křemenné sklo SiO_2 a organické polymery PMMA - poly(methyl-metakrylát), PTFE - poly(tetrafluorethylen), PI - polyimid.

Za zmínku stojí pozorování, že při ablacii křemíku několika ultrakrátkými pulsy vlnové délky 89 nm dochází k řadě morfologických změn, svědčících o vysoké koncentraci deponované energie [52] (AFM analýzou těchto vzorků jsem se později zabýval i já, viz kapitola 6). Výsledky prezentované v [56] naopak svědčí o excitaci látky do větší hloubky, než je typické při působení ultrakrátkých pulsů dlouhovlnného záření. Byla také prokázána absence nelineárních absorpčních procesů - multifotonové a lavinové ionizace.

Při zkoumání polymerů byly pozorovány některé nové vlastnosti XUV ablace. V některých režimech ablace PMMA [61] vznikají v ozářeném povrchu bubliny podobné účinkům ionizujícího záření provázeného zahřátím látky. Práce [52] popisuje zvýšení účinnosti ablace PTFE s rostoucí teplotou.

Další práce se zabývaly zkoumáním tenkých vrstev [51, 53], testovaných jako krytí zrcadel pro totální odraz svazků laseru na volných elektronech. Na tenké vrstvě amorfního uhlíku a-C [53] byla nalezena struktura LIPSS I. druhu s periodou 76 nm.

Kapitola 4

Cíle práce

Předkládaná disertační práce úzce navazuje na experimenty skupiny L. Juhý z Fyzikálního Ústavu AV ČR, která se jako jedna z prvních začala systematicky věnovat ablaci s nekoherentními [64] i laserovými [61, 53] zdroji XUV záření. Práci v této skupině jsem získal výjimečnou možnost analyzovat velké množství již ozářených vzorků a připravovat nové interakční experimenty.

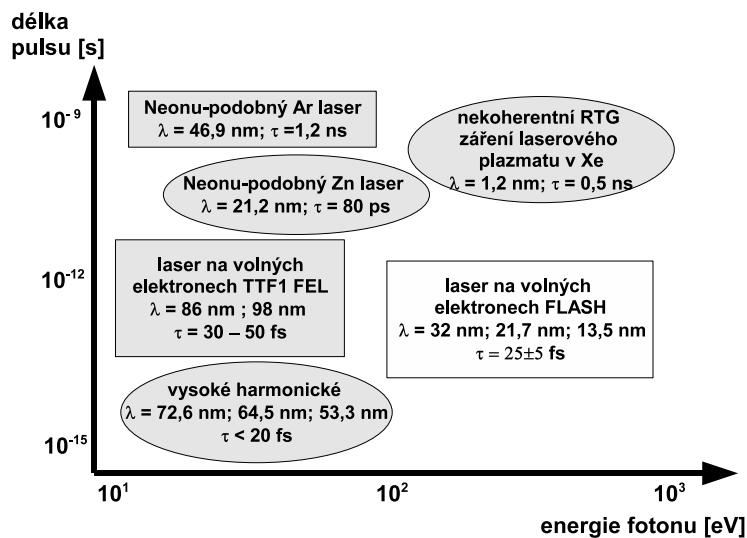
Výzkum jsem prováděl především s těmito cíli:

- Srovnat ablaci vyvolanou zářením různých XUV laserů, s ohledem na jejich vlnovou délku, fluenci a délku laserového pulsu.
- Identifikovat rozdíly (pokud existují) mezi ablací v XUV a oborech delších vlnových délek.
- Analyzovat kvalitu ablaovaných povrchů a hledat struktury LIPSS.

Kapitola 5

Experimentální část

Přehled ablačních experimentů, na nichž jsem se podílel, je zobrazen na obrázku 5.1. Oválná pole šedé barvy označují experimenty, kterých jsem se osobně účastnil. Obdélníková pole šedé barvy ukazují experimenty, u nichž jsem jen dodatečně analyzoval ozářené vzorky. Zapojoval jsem se také do příprav experimentu s laserem na volných elektronech FLASH (Free-electron LASer in Hamburg), vyznačeného bílým obdélníkem. V této kapitole a ve zbytku práce se věnuji pouze experimentům s XUV lasery nalézajícím se v levé části schématu 5.1.



Obrázek 5.1: Zdroje záření využité při výzkumu ablace v XUV oboru.

5.1 Zdroje záření využité při výzkumu ablace v XUV oboru

5.1.1 Neonu-podobný zinkový laser

Srdcem laserové laboratoře PALS (Prague Asterix Laser System) je výkonový jódový fotodisociační laser Asterix, viz obrázek 5.2 vlevo. Parametry svazku jsou shrnuty v tabulce 5.1, další informace lze nalézt v článku [65] nebo na stránkách www.pals.cas.cz. Na obrázku 5.2 vpravo je zobrazen tandem vakuových interakčních komor, osazených velkým množstvím portů pro zavedení laserových svazků a diagnostiky.



Obrázek 5.2: Laserový řetězec a interakční komory laboratoře PALS.

| | |
|---------------------|--|
| typ laseru | jódový fotodisociační plynový |
| vlnová délka | 1315 nm (+ harmonické 658, 438 a 328 nm) |
| délka pulsu | 300 ps |
| energie pulsu | až 1 kJ na základní vlnové délce |
| opakovací frekvence | 1 puls za 25-30 min. |

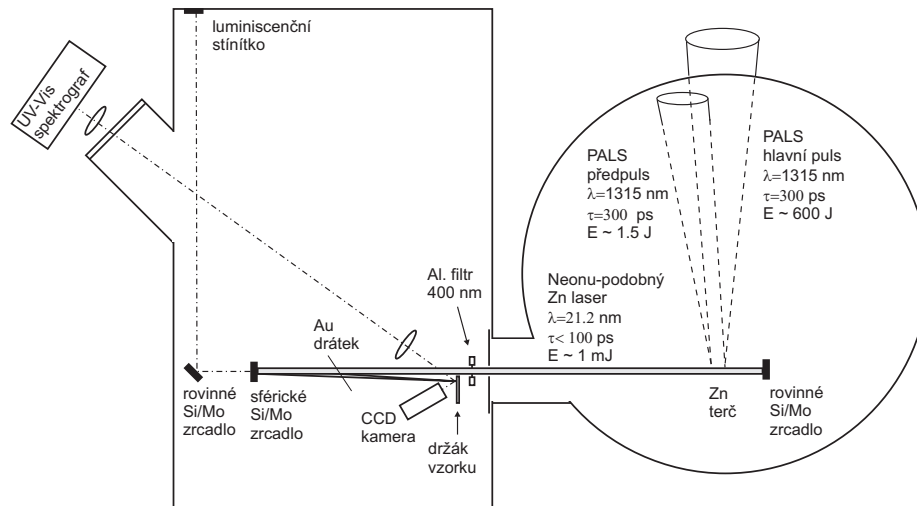
Tabulka 5.1: Parametry hlavního svazku výkonového laseru PALS.

Jednou z častých aplikací, vyžadujících plný výkon laseru PALS, je čerpání rentgenového laseru. Detailní informace o tomto zdroji (B. Rus a kol.) lze najít v pracích [42, 66, 67]. Tabulka 5.2 shrnuje jeho hlavní parametry během ablačních experimentů v letech 2003 a 2004.

Poprvé jsme fokusovaný neonu-podobný zinkový laser testovali pro ablaci v roce 2003 ve dvouzrcadlovém mimoosovém uspořádání, které se však kvůli

| | |
|----------------------------------|--|
| vlnová délka | 21,2 nm |
| délka pulsu | 90 ps |
| energie pulsu | ~ 1 mJ |
| fluence maximální (s Al filtrem) | ~ 2 J/cm ² (1 J/cm ²) |

Tabulka 5.2: Parametry neonu-podobného zinkového laseru.

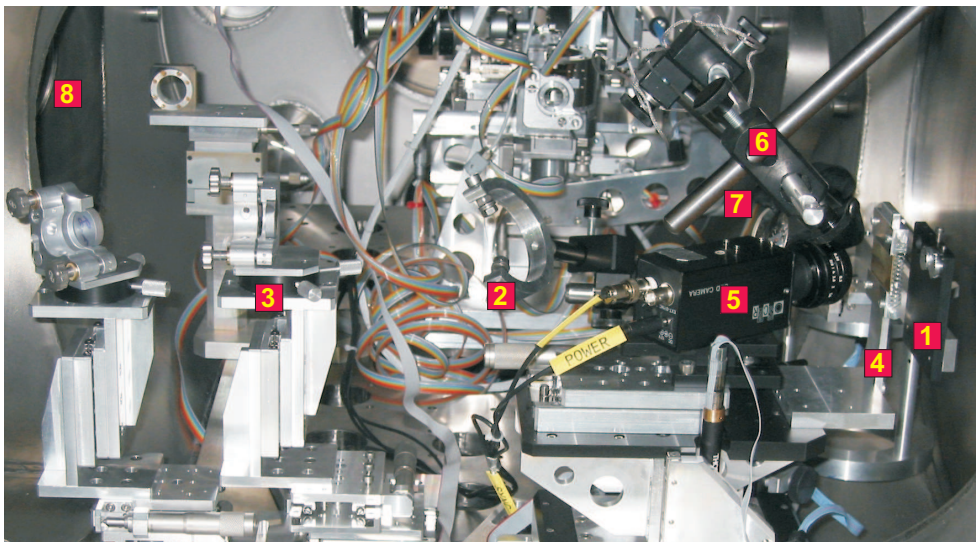


Obrázek 5.3: Jednozrcadlové téměř-osové uspořádání fokuse svazku na laseru 21,2 nm a in-situ diagnostika ablačních procesů.

velkým ztrátám energie neosvědčilo. Jeho popis lze nalézt v práci [A3]. V následujícím experimentu jsme zvolili jednozrcadlové, téměř osové uspořádání zobrazené na obrázku 5.3 a popsané v práci [A4].

Pomocný svazek a hlavní svazek vstupují do sférické komory různými porty a jsou fokusovány každý svou vlastní astigmatickou optikou - kompozitem válcové a sférické čočky. Předpuls v pomocném svazku o energii několik J s předstihem několika ns vytváří na zinkovém terči oblak plazmatu. Do něj je zaostřen hlavní puls s energií několika stovek J. Vzniká tak lineární oblast horkého a hustého plazmatu obsahující inverzní populace neonu-podobných zinkových iontů. V podélném směru se formuje a zesiluje v procesu ASE puls zinkového laseru. Po odrazu od multivrstvého Si/Mo zrcadla prochází tento puls ještě jednou plazmatem a nakonec vstupuje do válcové komory.

Na vzorek je laser fokusován multivrstvým sférickým Si/Mo zrcadlem, viz schéma a fotografie na obrázcích 5.3 a 5.4 Dlouhovlnnou emisi plazmatu lze



Obrázek 5.4: Fotografie aparatury uvnitř válcové komory. 1 - Al filtr, 2 - Au drátek, 3 - fokusační zrcadlo, 4 - držák vzorku, 5 - CCD kamera, 6 - Faradayova měrka, 7 - sběrná čočka, 8 - okno komory vedoucí ke spektroskopu. Za fokusačním zrcadlem pokračuje trasa do zobrazovacího luminiscenčního detektoru. V pozadí jsou vidět součásti jiného experimentu.

odfiltrovat pomocí Al filtru tloušťky 400 nm. Pro sledování energie svazku byla testována metoda postavená na radiometrii záření rozptýleného na tenkém zlatém drátku, který byl vložen do svazku. Povrch vzorku byl sledován zepředu optickou CCD kamerou, Faradayovou měrkou a sběrnou optikou odvádějící emitované záření ven z komory do UV-VIS spektrografu. Při odsunutí fokusačního zrcadla bylo možno změřit profil svazku na luminiscenčním stínítku.

V oddílech kapitoly 6 jsou komentovány výsledky experimentů s těmito materiály: křemík (6.1), PMMA (6.2) a tenké vrstvy amorfního uhlíku na křemíkovém substrátu (6.5).

5.1.2 Svazek vysokých harmonických frekvencí

V roce 2005 jsme ve výzkumném centru CEA/Saclay (Francie) získali přístup ke svazku vysokých harmonických frekvencí. Schéma experimentu je zobrazeno na obrázku 5.5. Svazek HHG byl generován v plynové kyvetě plněné xenonem, v ohnisku výkonového laserového systému LUCA (Laser Ultra Court Accordable). K jeho oddělení od čerpacího infračerveného (IČ) svazku

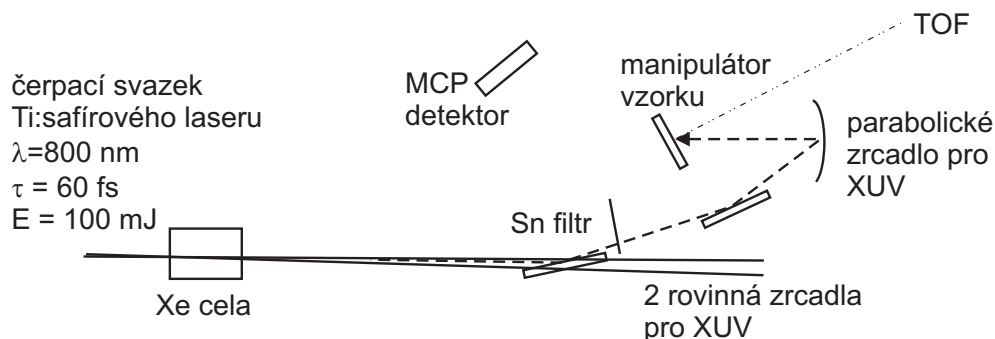
byla použita rovinná zrcadla, s antireflexní vrstvou pro IČ, avšak splňující podmínky totálního odrazu pro HHG. Po průchodu tenkým 100 nm Sn filtrem zůstaly dominantními složkami 11., 13. a 15. harmonická frekvence. V ohnisku HHG svazku byl na manipulátoru umístěn vzorek, jehož povrch byl sledován TOF hmotovým spektroskopem. Pro sledování energie HHG svazku byl využíván MCP detektor zaměřený na plochu Sn filtru.

Fluence dostahovala nízkých hodnot (viz tabulka 5.3), takže způsobené poškození nemělo charakter ablace, ale desorpce [5]. Pro dosažení celkové dávky srovnatelné s ostatními experimenty bylo ozařování prováděno po dobu desítek minut.

V oddíle 6.5 jsou diskutovány výsledky tohoto experimentu s 46 nm tlustými vrstvami a-C na Si substrátu

| | |
|---------------------|--|
| čerpaní | Ti:Safírový systém LUCA |
| aktivní médium | Xe |
| vlnová délka | $\lambda=800\text{nm}$, $\tau=60\text{fs}$, $E=100\text{mJ}$ |
| délka pulsu | 72,7 nm (11ω), 64,5 nm (13ω), 53,3 nm (15ω) |
| opakovací frekvence | 15 fs jako obálka série sub-fs pulsů |
| fluence | 20 Hz |
| | $\leq 0,1 \text{ mJ/cm}^2$ |

Tabulka 5.3: Parametry svazku vysokých harmonických frekvencí v CEA/Saclay.



Obrázek 5.5: Uspořádání experimentu se svazkem vysokých harmonických frekvencí v CEA/Saclay

5.1.3 Neonu-podobný argonový laser

Neonu-podobný argonový laser v kapilárním výboji [68] ve Fort Collins (Prof. Rocca, Colorado State University, USA) je mimořádně vhodný k aplikacím díky své kompaktnosti, viz fotografie na obrázku 5.6. Tabulka 5.4 shrnuje parametry, kterých dosahoval během ablačního experimentu v roce 2003.

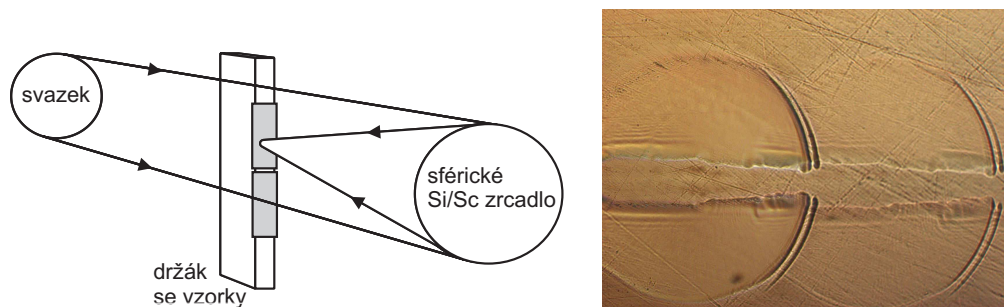


Obrázek 5.6: Neonu-podobný argonový laser ve Fort Collins.

| | |
|-----------------------------|----------------------------|
| vlnová délka | 46,9 nm |
| délka pulsu | 1,2 ns |
| energie pulsu | 130 μ J |
| šířka nefokusovaného svazku | \sim mm |
| šířka svazku na terči | 20 – 160 μ m |
| fluence | 0,2 - 10 J/cm ² |

Tabulka 5.4: Parametry neonu-podobného argonového laseru.

Bylo zvoleno osově fokusační uspořádání, použité na tomto laseru již dříve [69, 54]. Vzorky 2 mm x 5 mm nalepené na tenkém nožovitém držáku šířky 2mm byly postaveny do středu nefokusovaného svazku, viz obrázek 5.7 vlevo.



Obrázek 5.7: Osové uspořádání fokusace neonu-podobného argonového laseru (vlevo) a jeho důsledky pro tvar kráteru (vpravo). Mikrofotografie ukazuje krátery vytvořené takto fokusovaným svazkem v polyimidu.

Svazek se zablokovanou centrální částí byl pak odražen zpět sférickým multi-vrstvým Sc/Si zrcadlem o odrazivosti cca. 30%. Přibližováním a vzdalováním vzorku od ohniska byla řízena fluence, pohybem napříč byly pro různé fluence vytvořeny série kráterů s 1, 2, 4, 8, 16 a 32 akumulovanými pulsy. V důsledku osového uspořádání byla zastíněna centrální část kráterů, viz obrázek 5.7 vpravo.

Popsaným způsobem byly ozářeny vzorky křemíku a trojice polymerů PMMA, PI a PTFE. Výsledky zkoumání jsou uvedeny v částech 6.1 a 6.2.

5.1.4 Laser na volných elektronech

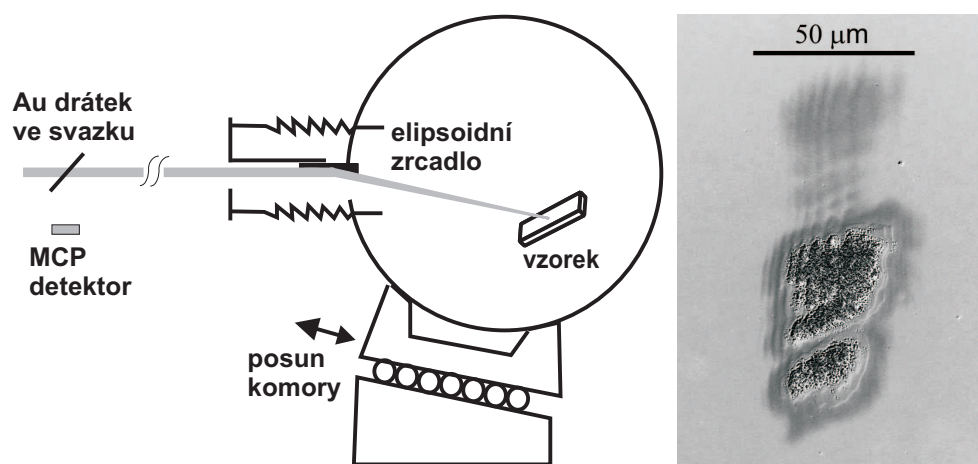
V letech 2001 a 2002 byl v laboratořích DESY v Hamburku uveden do provozu první laser na volných elektronech pracující v XUV oblasti, označený jako TTF1 (TESLA Test Facility 1). V režimu saturace zisku SASE byl provozován na vlnových délkách 80 nm – 120 nm. Více o tomto laseru se lze dozvědět v práci [70] a odkazech v ní uvedených. Během ablačních experimentů dosahoval laser parametrů uvedených v tabulce 5.5.

| | |
|-----------------------|-------------------------------|
| vlnová délka | 98 a 86 nm |
| délka pulsu | 30 - 50 fs |
| energie pulsu | až 100 μ J |
| šířka svazku na terči | \sim 10, 100 μ m |
| fluence | až jednotky J/cm ² |

Tabulka 5.5: Parametry laseru na volných elektronech TTF1.

Pro výzkum ablace na TTF1 byla vyvinuta komora FELIS (Free-Electron

Laser Interaction with Solids). Jelikož byla navázána přímo na trasu lineárního urychlovače, musela být na rozdíl od jiných experimentů popsáných v této kapitole čerpána do ultravysokého vakua. Detaily komory a diagnostiky jsou popsány v práci [71], zjednodušené schéma je znázorněno na obrázku 5.8 vlevo. Ještě před vstupem do komory byla monitorována energie svazku. Za tímto účelem byl do svazku vložen 300 μm zlatý drátek, rozptylující část energie do multikanálových destiček (MCP) [63]. Fokusaci obstaralo pozlacené elipsoidální zrcadlo pro totální odraz, fixované vůči svazku a spojené s komorou pomocí vlnovce. Změna fluence byla prováděna pohybem celé komory. Difrakce na zlatém drátku a další difrakční poruchy jsou zřetelně obtisknuty v topografii ablačních kráterů, viz obrázek 5.8 vpravo.

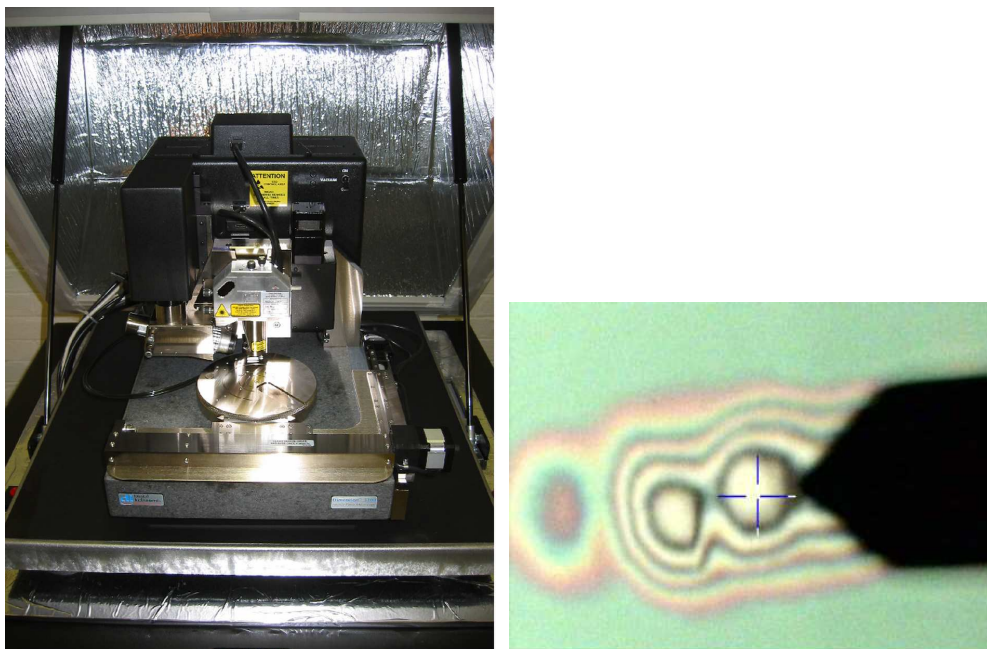


Obrázek 5.8: Fokusační schéma laseru na volných elektronech TTF1 a difrakcí modifikovaný kráter v křemíku.

Cílem provedených experimentů byl nejen základní výzkum interakce materiálů a ultrakrátkých XUV pulsů, ale také otestování technologií a diagnostik pro nastupující projekty. Velká pozornost byla věnována testování odolnosti (viz oddíl 6.5) vrstev amorfního uhlíku na křemíkovém substrátu, které slouží jako pokrytí zrcadel pro totální odraz využívaných na zařízení FLASH a v budoucnu zřejmě i na evropském rentgenovém laseru XFEL.

5.2 Diagnostické metody

Při hledání nezřetelných ablačních nebo desorpčních kráterů se osvědčil optický Nomarského mikroskop (f. Olympus), který využívá interference mezi referenčním svazkem a zářením odraženým od povrchu. Radikálně se tím



Obrázek 5.9: Vlevo - AFM mikroskop Dimension 3100, vpravo - zaměření hrotu na kráter.

zvyšuje kontrast obrazu, umožňující nalézt útvary hluboké jen několik nm. Dále tak lze pozorovat i úplně ploché a barevně neodlišené útvary, u nichž došlo v důsledku chemických nebo fázových přeměn k modifikaci fázové složky reflektivity povrchu.

Ke zjištění topografie ablaovaných povrchů jsem zpočátku používal 1D profilometr Alpha Step 500 (f. Tencor) umožňující s rozlišením několika nanometrů získat profil přes oblast dlouhou několik set mikrometrů. Jedním z jeho omezení je nepřesnost umístění hrotu ve zkoumané oblasti. Další nevýhodou profilometru je, že pracuje v kontaktním módu, tj. jeho hrot je tažen po povrchu. V případě měkkých materiálů se hrot zarývá do povrchu. Tím je nejen poškozen povrch, ale také zhoršeno rozlišení. Výsledky měření s tímto přístrojem lze nalézt v oddílech 6.1 a 6.2.

Ke strukturální analýze změn na povrchu jsme používali Ramanův spektrometr (f. Renishaw Ramascope) vybavený CCD kamerou a mikroskopem DMLP (f. Leica). Excitaci zajišťoval mikrovazek Ar⁺ laseru, o průměru 3-5 μm . Klíčovou úlohu sehrála Ramanova spektroskopice při analýzách tenkých vrstev amorfního uhlíku (oddíl 6.5).

Hlavním nástrojem při analýze ablačních kráterů (výsledky v částech 6.1, 6.2, 6.3 a 6.5) se stal AFM mikroskop NanoScope Dimension 3100 s řídicí

jednotkou NanoScope IV Control Station (Veeco), viz obrázek 5.9. Většinou jsem ho využíval v tzv. poklepovém (tapping) módu. Jak název napovídá, v tomto režimu se skenující hrot nedotýká povrchu stále, pouze na něj s vysokou frekvencí (\sim kHz) poklepává [72]. Snižuje se tak riziko poškození měkkých (např. polymerních) vzorků oproti standardnímu kontaktnímu módu, kdy je hrot po povrchu tažen. Další výhodou tohoto režimu je možnost proměřovat větší plochy (až $80\mu\text{m} \times 80\mu\text{m}$) vyšší rychlostí (až $30\mu\text{m/s}$). Vertikální rozsah činí $5\mu\text{m}$. Integrovaný optický mikroskop umožňuje zběžné prohlédnutí vzorku a umístění hrotu na kráter. Jedná se o AFM systém pracující ve vzduchu, avšak izolovaný od rušivých akustických, elektrických a mechanických vzruchů. Podélné rozlišení na úrovni jednotek nebo desítek nanometrů je pro naše účely postačující.

Jelikož software AFM kromě standardních analýz (profily, výpočet drsnosti) neumožňuje výpočet objemu povrchových struktur, vytvořil jsem pro tento účel vlastní proceduru v jazyce IDL. Ta umožňuje uživateli snadno definovat hranice kráteru na 2D zobrazení AFM dat. V dalších krocích procedura rekonstruuje plochu původního neozářeného povrchu a z rozdílu této plochy a AFM dat vypočítá objem kráteru.

5.3 Vzorky

Hlavní pozornost jsme věnovali těmto materiálům:

Poly(methyl metakrylát), zkr. PMMA. U nás je tento polymer známý jako plexisklo. Jde o tepelně i radiačně středně odolný polymer. K ablaci se používají excimerové UV lasery s vlnovou délkou 248 nm a kratší. Používali jsme objemové vzorky (f. Goodfellow), nařezané z 1 mm tlustých plátů krytých ochrannou fólií, po jejímž sejmutí již nebylo potřeba povrch leštit. Dále byly používány vrstvy tloušťky 500 nm PMMA na křemíkovém substrátu (f. Silson).

Polyimid, zkr. PI. Používali jsme typ Kapton (f. Goodfellow), který se díky zastoupení aromatických skupin v polymerním řetězci vyznačuje unikátní kombinací vlastností - vysokou pevností, tvrdostí, tepelnou stabilitou a odolností vůči ionizujícímu záření. Kapton je ve viditelném i UV spektru neprůhledný, při ablaci UV zářením karbonizuje. Vzorky byly nařezány z 1 mm tlusté destičky a vyleštěny.

Poly(tetrafluorethylen), zkr. PTFE. Tento polymer, označovaný také jako Teflon, se vyznačuje velmi vysokou tepelnou stabilitou. Je měkký a málo odolný vůči ionizujícímu záření. Vzorky byly nařezány z 1 mm široké fólie (f. Goodfellow) a vyleštěny. Jelikož se, díky měkkosti PTFE, leštěním nedosahovalo uspokojivé hladkosti povrchu, bylo testováno také vyhlazování

vzorků tahem leštěné destičky zahřáté na několik 100 °C. PTFE je díky slabé absorpci i v UV oblasti obtížně ablaován.

Monokrystalický křemík, zkr. Si. Vzorky byly nařezány ze standardních leštěných waferů s orientacemi povrchu (100) resp. (111).

Tenké vrstvy amorfního uhlíku na Si substrátu, zkr. a-C. Amorfni uhlík je látka, který se svou strukturou a vlastnostmi pohybuje mezi diamantem a grafitem. Používá se jako pokrytí zrcadel pro totální odraz svazků XUV laserů na volných elektronech. Jeho předností je schopnost současné technologie pokrýt velké plochy homogenními vrstvami o nízké drsnosti. Používané 46 nm vrstvy byly připraveny metodou magnetronového naprašování (f. GKSS Forschungszentrum Geesthacht GmbH a f. Incoatec GmbH).

Kapitola 6

Výsledky

V této kapitole jsou shrnuty hlavní výsledky našeho výzkumu laserové XUV ablace s odkazem na přiložené publikace [A1] - [A8]. Zatímco tyto publikace často srovnávají chování různých materiálů při ozáření stejným zdrojem záření, v následujícím textu se věnujeme jednotlivým materiálům odděleně, např. křemíku (6.1), organickým polymerům (6.2) nebo vrstvám amorfního uhlíku (6.5)). Výsledky publikované na různých místech se zde proto prolínají.

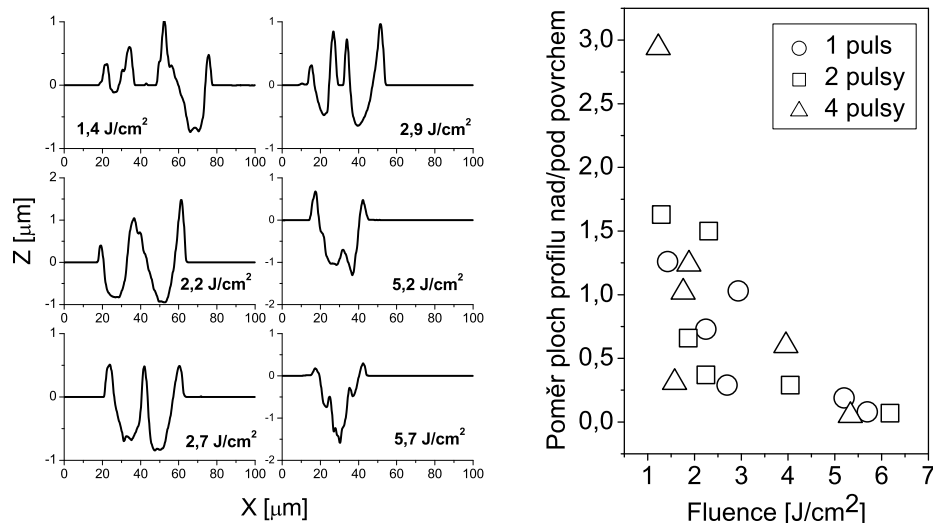
Alespoň stručně výjmenujme témata přiložených prací [A1] - [A8]. Přehledový článek [A1] pojednává o laserem indukovaných periodických strukturách LIPSS. Práce [A2] se věnuje ablaci nekoherentním XUV zářením. Ablaci materiálů zářením 21,2 nanometrového laseru v zinkovém plazmatu se zabývají práce [A3, A4]. Srovnání ablace organického polymeru PMMA pulsy XUV záření o různých délkách je věnována práce [A5]. Článek [A6] referuje o ablaci křemíku a SiO_2 ultrakrátkými pulsy XUV laseru na volných elektronech. Ablaci různých organických polymerů zářením 46,9 nm laseru v argonovém plazmatu se věnuje článek [A7]. Práce [A8] referuje o poškození tenkých vrstev amorfního uhlíku XUV zářením.

Poznamenejme, že poznatky o ablaci křemíku nanosekundovým zářením 46,9 nm laseru z oddílu 6.1 ještě nebyly publikovány.

6.1 XUV ablace křemíku

Zjistili jsme, že ablace křemíku piko- a nanosekundovými XUV pulsy má stejné vlastnosti jako ablace indukovaná dlouhovlnným zářením. Při obou dochází k výronům a výtryskům tekutého křemíku do okolí kráteru. Byl také pozorován podobný přechod mezi neexplozivním a explozivním režimem ablace, jaký popisují v části 2.2.1.

Nanosekundovými pulsy 46,9 nm laseru byl povrch ozářen na 6 fluencích



Obrázek 6.1: Vlevo) Profily kráterů vytvořených v křemíku jediným pulsem 46,9-nm laseru v různých vzdálenostech od ohniska. Vpravo) Poměr ploch profilů nad a pod úrovní povrchu, určený pro krátery vytvořené 1, 2 a 4 pulsy.

volených pohybem vzorku vůči ohnisku. Jak je patrné ze série profilů na obrázku 6.1 vlevo, pro nízké fluence se hloubka kráteru příliš neliší od výšky výronu taveniny na okrajích a povrch uvnitř kráteru je poměrně hladký. Pro vyšší fluence se kráter prohlubuje a jeho vnitřní povrch je drsnější, viz AFM snímky na obrázku 6.2. Tato pozorování jsou ve shodě s výsledky práce [6] o nanosekundové ablací křemíku ve viditelném a UV oboru, kde jsou dány do spojitosti s nástupem explozivního (homogenního) vypařování.

V práci [6] byl ukázán prudký pokles poměru mezi objemem látky vyvržené nad úroveň neozářeného povrchu a objemem kráteru pod touto úrovní, z hodnot blízkých 1 pro podprahové intenzity po hodnoty řádu 0,1 pro nadprahové intenzity. Při analýze kráterů ablaovaných 46,9 nm pulsy jsem našel tento pokles u podobné veličiny - poměru mezi plochami profilů nad a pod úrovní povrchu, jak je patrné z obrázku 6.1 vpravo. Rozptyl této veličiny vzrůstá s počtem akumulovaných pulsů tak, jak se komplikuje topografie kráteru, proto jsou vyneseny jen body určené z kráterů ablaovaných 1, 2 a 4 pulsy. Na základě výše uvedených pozorování odhaduji, že práh pro nástup explozivního odpařování křemíku jako klíčového mechanismu ablace nanosekundovými pulsy 46,9-nm záření se nalézá v oblasti 3 – 5 J/cm².

Pro odhad prahu byl v [6] použit 1D model vedení tepla s povrchovým

zdrojem. V našich podmínkách dává hodnotu $1,7 \text{ J/cm}^2$. Předpoklady modelu ovšem nejsou zcela splněny, neboť pro $1,2 \text{ ns}$ pulsy $46,9 \text{ nm}$ záření není absorpční délka (210 nm) mnohem kratší než tepelná difusní délka (150 nm). Odhaduji, že šířka teplotního profilu po odeznění 1 ns pulsu je nadhodnocena s faktorem přibližně $(210+150)/150 = 2,4$. S podobnou chybou bude nadhodnocena vypočtená teplota a podhodnocena prahová hodnota fluence. Vzhledem k těmto úvahám se experimentální odhad prahu fázové exploze $3 - 5 \text{ J/cm}^2$ jeví jako realistický.

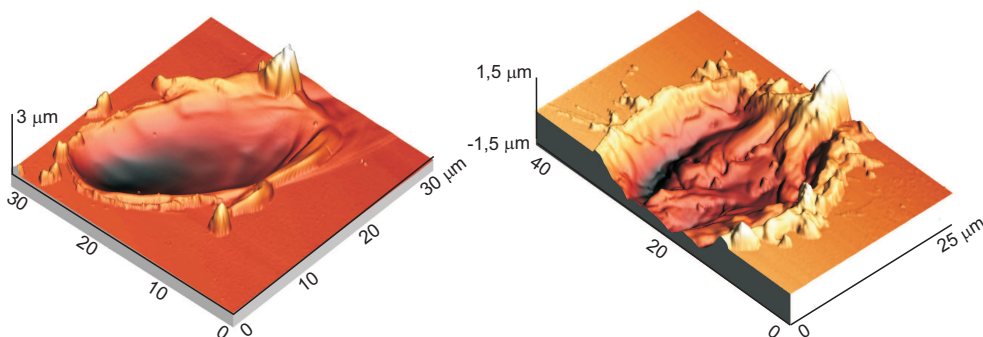
Výrony a oscilace taveniny pozorujeme také na kráterech vytvořených pulsy zinkového laseru, viz práce [A4] a obrázek 6.3. Ramanovou spektroskopií nebyly zjištěny žádné příznaky amorfizace křemíku na dně kráteru, podobně jako při ablaci jinými XUV pulsy délky stovek ps [61].

Zcela odlišný charakter má ablace křemíku indukovaná femtosekundovými XUV pulsy, viz [A6]. Podepisuje se na tom vysoká míra lokalizace energie, daná kombinací krátké absorpční délky $\sim 10 \text{ nm}$ záření a ultrakrátkého trvání laserového pulsu 30 fs .

Pro velmi nízké fluence, pohybující se mezi $0,005$ a $0,04 \text{ J/cm}^2$, není ještě pozorována skutečná ablace, ale povrch je již strukturálně narušen. V Nomarského mikroskopu jsou pozorovány stopy se změněným indexem lomu a Ramanova spektroskopie odhaluje nastupující amorfizaci křemíku.

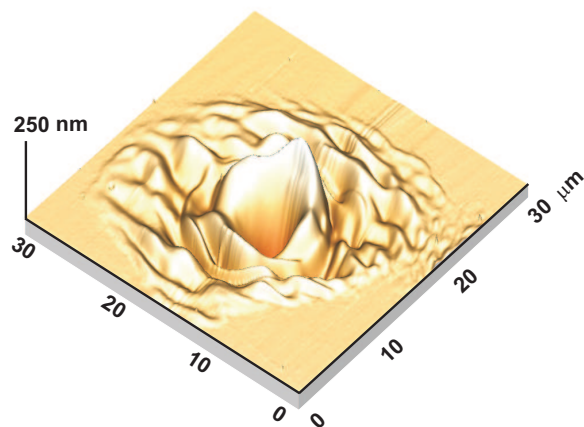
K ablaci dochází při překročení prahu, pohybujícího se blízko hodnoty $0,04 \text{ J/cm}^2$. Jak je patrné z obrázku 6.4, kráter je zpočátku pouze několik nm hluboký a jeho povrch je hladký.

S dalším růstem fluence se radikálně mění charakter poškození, viz obrázek 6.5. Nejvíce exponovaná místa jsou pokryta kobercem sloupců, které mají šířku řádově μm . Vyrůstají ze dna, ležícího až několik set nm pod povrchem

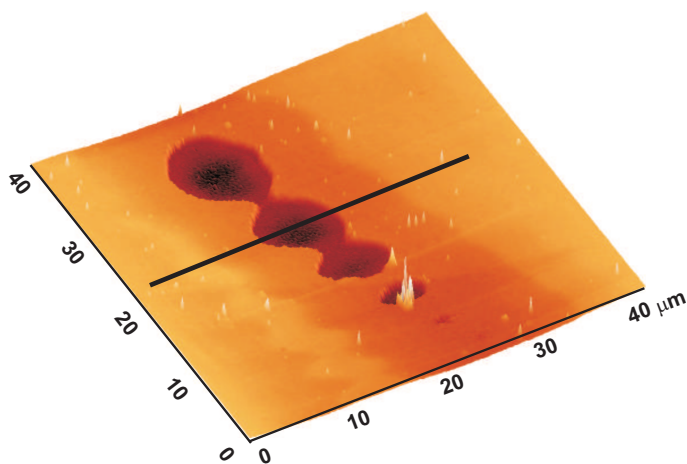


Obrázek 6.2: AFM topografie ablačních kráterů křemíku: vlevo) část kráteru, fluence $1,4 \text{ J/cm}^2$; vpravo) celý kráter, fluence $5,2 \text{ J/cm}^2$.

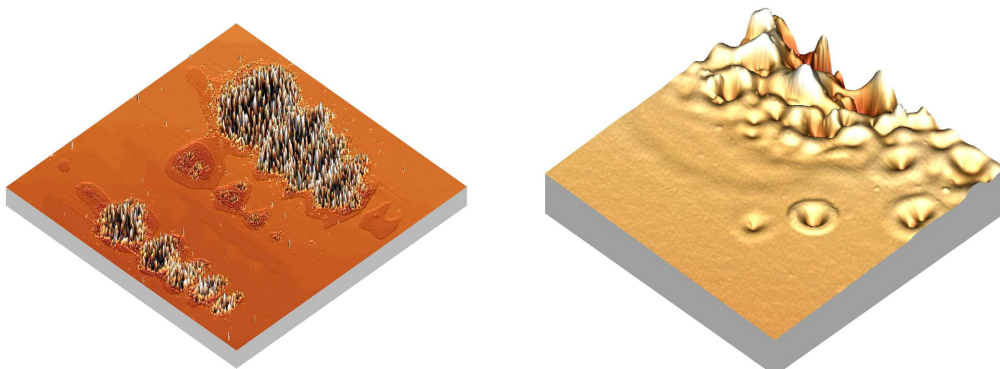
a dosahují výšek v témže řádu. Směrem k okraji na tuto strukturu navazuje oblast kráteru s hladkým povrchem, hluboká typicky několik nm. V této fázi



Obrázek 6.3: AFM topografie ablačního kráteru vytvořeného 100 ps pulsem 21,2-nm záření o fluenci kolem 2 J/cm^2 . Převzato z [A4].



Obrázek 6.4: AFM topografie části ablačního kráteru v křemíku, vytvořeného 11 pulsy laseru TTF1 o fluenci blízké $0,04 \text{ J/cm}^2$. Jde o otisk jedné z interferenčních struktur, mající na středu velmi kontrastní maxima.



Obrázek 6.5: Vlevo) AFM topografie ablačního kráteru v křemíku, vytvořeného 11 pulsy laseru TTF1 o fluenci cca 0.07 J/cm^2 . Vpravo) Detail okraje kráteru.

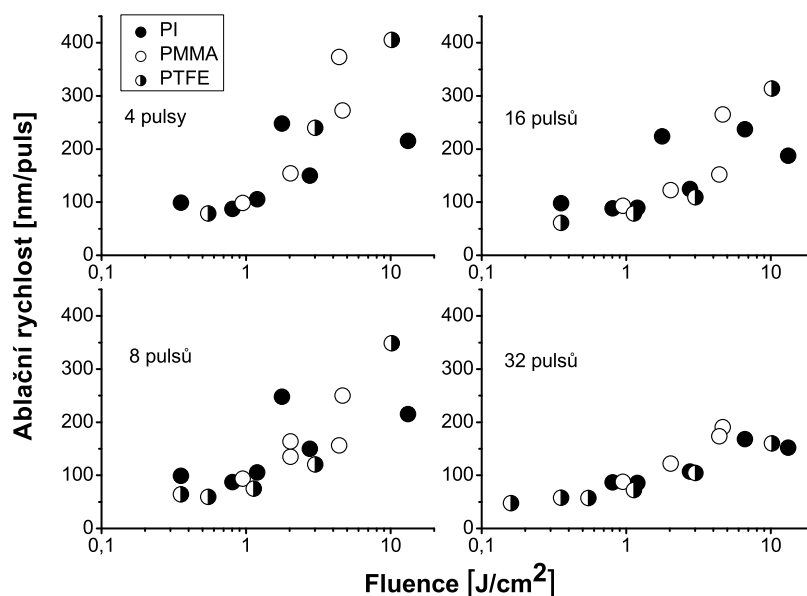
dochází také k emisi iontů Si s vysokým nábojem a energií [A6].

V mělké části kráteru i poměrně daleko za jeho hranicemi lze nalézt otvory - pozůstatky bublin, uniknuvších z povrchu. Otvory zachycené např. na obrázku 6.5 vpravo mají hloubku v řádu desítek nm, která je srovnatelná s absorpční délkou (11 nm pro 98 nm záření) a mnohem delší než tepelná difusní délka (0,75 nm pro 30 fs puls). Jde o důkaz, že povrch křemíku byl intenzivně excitován i mimo ablační krátery. V některých místech zřejmě došlo k tomu, že termálně nebo netermálně natavený křemík znovu neztuhnul, ale místo toho začal přecházet do plynného skupenství a vytvořil bublinu. Jako nukleační jádra by této fázové přeměně mohly posloužit poruchy krystalické mřížky.

V literatuře jsou sloupcovité struktury na křemíku (ale i jiných materiálech) hojně popsány, viz práce [73, 74] a odkazy v nich uvedené. Objevují se až při akumulaci většího počtu pulsů, ve vakuu i v různých typech atmosfér, pro femtosekundové i nanosekundové pulsy. Má se za to, že za jejich růst mohou změny v hustotě absorpce energie na nerovném povrchu a redepozice par na vrcholcích sloupců. V našem případě byl tento vývoj pravděpodobně urychlen intenzivní produkcí bublin.

6.2 XUV ablace organických polymerů

Trojice organických polymerů PMMA, PTFE a PI se při ablaci dlouhovlnným i UV zářením chová velmi odlišně. Při experimentech s 46.9-nm laserem se však ukázalo, že na této vlnové délce se jejich ablační rychlosti v podstatě

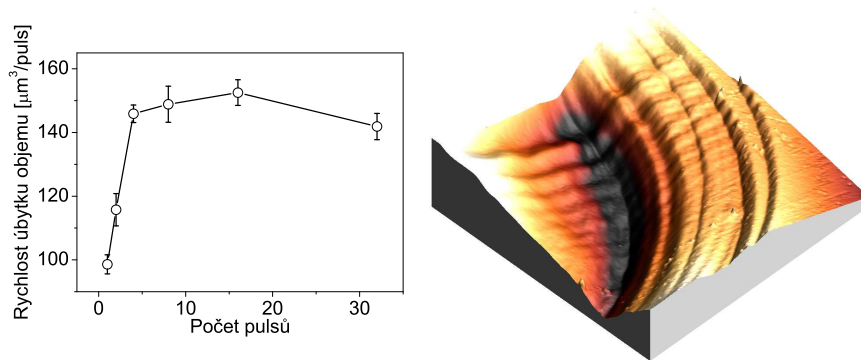


Obrázek 6.6: Srovnání ablačních rychlostí 3 organických polymerů při ablaci 46,9-nm zářením. Závislosti pro 4 a 32 pulsů již byly prezentovány v práci [A7].

neliší, viz obrázek 6.6 z práce [A7]. Domníváme se, že jde o souhru dvou faktorů: blízkých absorpčních délek PMMA a PI a kratší absorpční délky PTFE, která je ovšem kompenzována menší odolností PTFE vůči radiačně-indukovanému štěpení vazeb.

Z obrázku 6.6 je patrné, že rozptyl bodů v ose Y se snižuje s rostoucím počtem akumulovaných pulsů. Opakováním se pravděpodobně průměrují rozdíly mezi jednotlivými pulsy laseru. Kromě toho si můžeme všimnout, že ablační rychlosti s počtem pulsů mírně klesají. Je málo pravděpodobné, že by se zároveň a podobným způsobem u všech třech polymerů projevilo zesítnění. Domnívám se, že spíše jde o důsledek fluktuací směru šíření laserových pulsů. Stopa laserového svazku, jehož směr fluktuuje, se po vzorku výstřel od výstřelu mírně pohybuje. Pokud je v rozložení intenzity nějaké maximum, nedopadne vícekrát přesně na stejné místo. Při akumulaci velkého množství pulsů se proto nejhlubší část kráteru prohloubí průměrně pomaleji, než při malém množství pulsů, zato se rozšíří.

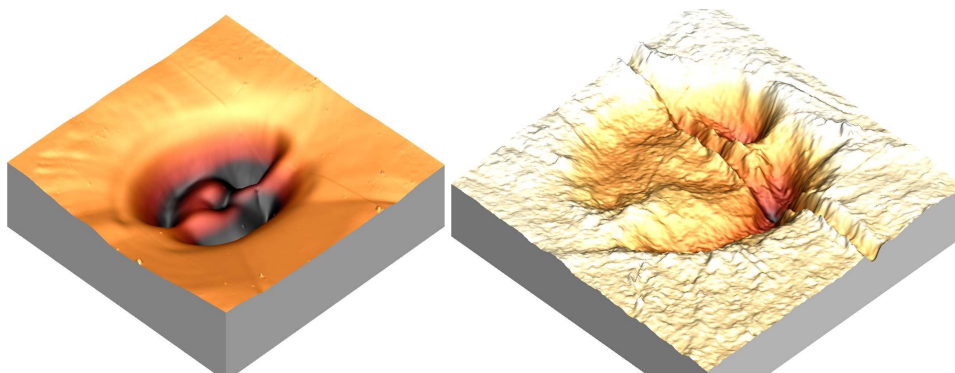
Provedl jsem AFM měření s cílem určit rychlost úbytku objemu PMMA v závislosti na počtu pulsů. Ukazuje se (Obr. 6.7 vlevo), že tato rychlost



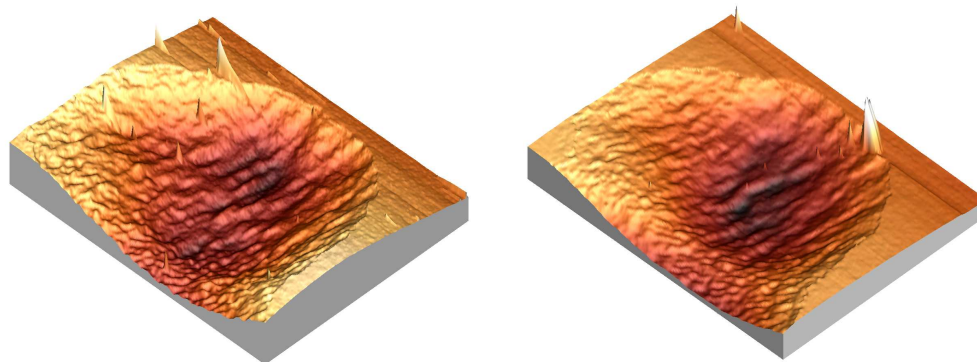
Obrázek 6.7: Vlevo) Úbytek objemu PMMA ablaovaného 46,9 nm laserem při fluenci $3,1 \text{ J/cm}^2$. Objemy byly vypočítány z AFM dat. Vpravo) Detail $20 \times 20 \mu\text{m}$ ablačního kráteru vytvořeného čtyřmi pulsy fluence $3,1 \text{ J/cm}^2$.

zpočátku rychle naroste a pro více než 4 pulsy je saturována. Pak už pravděpodobně na dně kráteru zůstává narušená vrstva PMMA o stálé tloušťce. Na detailním snímku vpravo vidíme, že i v této fázi zůstává dno kráteru hladké. Nerovnosti způsobují pouze difrakční linie pocházející od difrakce záření na držáku vzorku a schody vzniklé pravděpodobně výše zmíněnými posuny stopy svazku.

Ablace všech polymerů měla charakter leptání bez známek tepelného poškození. V případě PMMA byl povrch vždy velmi hladký pro různé fluence i počty pulsů, s lokální drsností až na úrovni jednotek nm, viz Obr. 6.8



Obrázek 6.8: Vlevo) AFM $40 \times 40 \mu\text{m}$ kráteru v PMMA, 8 pulsů 46,9 nm záření fluence 8 J/cm^2 . Vpravo) AFM $40 \times 40 \mu\text{m}$ kráteru v PTFE, 2 pulsy 46,9 nm záření fluence $5,5 \text{ J/cm}^2$.



Obrázek 6.9: Sobě odpovídající výřezy $50\ \mu\text{m} \times 40\ \mu\text{m}$ AFM topografie dvou kráterů, ablaovaných nezávisle na sobě za stejných podmínek (1 puls $21,2\ \text{nm}$ záření o fluenci $1\ \text{J}/\text{cm}^2$).

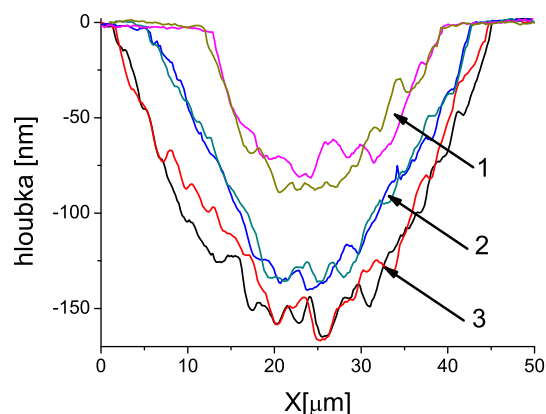
vlevo. Povrch PTFE má horší výchozí kvalitu a je měkký, na Obr. 6.8 vpravo vidíme rýhu od hrotu 1D profilometru. Jeho lokální drsnost se však ablací také nezhoršuje.

Poškození ještě tvrdším zářením $21,2\ \text{nm}$ má také charakter leptání, jak se můžeme přesvědčit na AFM snímcích v obrázku 6.9. Mikrometrové struktury vznikají otiskem difrakce na záměrných křížích optické trasy laseru a na zlatém drátku vloženém do svazku, více viz [A4]. Zajímavým výsledkem je vysoká reprodukovatelnost difrakčních obrazců a profilu kráteru. Na obrázku 6.10 jsou vyneseny dvojice profilů, změřené na sobě odpovídajících pozicích kráterů z obrázku 6.9. Tato reprodukovatelnost je důležitá z hlediska aplikací. Svědčí o dvou skutečnostech: 1) Potvrzuje se stabilita výstupní energie a tvaru svazku Zn laseru, o kterých již referovala práce [67]. 2) PMMA by bylo možno použít pro dozimetrické (radiometrické) účely.

6.3 Laserem indukované periodické struktury (LIPSS)

Při AFM měření jsem se zaměřil také na pátrání po strukturách známých jako LIPSS, které jsou typickým průvodním jevem ablace vyvolané konvenčními lasery [A1].

Na vzorcích ozářených $21,2\ \text{nm}$ laserem a $46,9\ \text{nm}$ laserem jsem nezaznamenal žádné LIPSS 1. druhu, tj. periodické struktury vznikající v důsledku interference laseru se zářením rozptýleným na povrchu. Negativní byly i výsledky hledání na velkém množství vzorků z TTF1 (Si, $100\ \text{nm}$ Au /Si). Jsou



Obrázek 6.10: Dvojice sobě odpovídajících profilů (1- blízko u kraje kráteru, 3 - v jeho nejhlubší části), změřené v různých pozicích AFM záznamů z Obr. 6.9.

známa jen dvě ojedinělá pozorování, a to na vzorcích a—C (TTF1 $\lambda=86$ nm, [53]) a PMMA (TTF1 $\lambda=98$ nm, [A5]), viz Obr. 6.11 vpravo. Rozeberme možné příčiny tak řídkého výskytu:

- Absence polarizace záření.

Z literatury mi není známo žádné pozorování, kdy by se LIPSS 1. druhu vytvořily pod vlivem nepolarizovaného záření. Jelikož byly lasery plazmového typu (21,2 nm a 46,9 nm) fokusovány v osovém nebo téměř-osovém uspořádání, nebyl v těchto svazcích přítomen žádný element, který by definoval polarizaci. Naproti tomu svazek laseru na volných elektronech TTF1 byl polarizovaný lineárně díky symetrii undulátoru.

- Koherence záření – příčná (prostorová) a podélná (časová).

U všech zmíněných XUV laserů byla demonstrována vysoká příčná koherence [75, 42, 41]. Samotné zdroje (elektronový svazek, plazmatický sloupec) sice vyzařují s nízkou příčnou koherencí, ta se však zvětšuje při šíření svazku volným prostorem (Van Cittert-Zernikův teorém). Časová koherence je nízká (u plazmových laserů v řádu 100 mikrometrů) neboť se pulsy formují ze šumu v procesech ASE a SASE. Časová koherenční délka je nepřímo úměrná šířce laserové čáry [39].

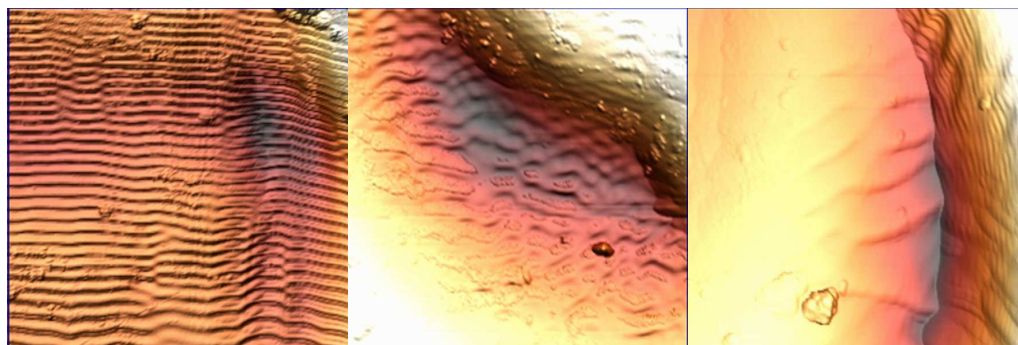
U femtosekundových laserů je dalším omezujícím faktorem délka pulsu. Za 30 fs urazí záření pouhých 9 mikronů. Délka pulsu a koherenční délka

pravděpodobně ztrácí na důležitosti, pokud je akumulováno více pulsů (na TTF1 to bylo 100 pulsů na a-C a 22 pulsů na PMMA). I v literatuře jsou popsány případy, kdy LIPSS 1. druhu vznikají pod vlivem většího počtu fs pulsů.

- Rozptyl a šíření záření podél povrchu

Intenzita rozptylu je závislá na detailní topografii povrchu a permitivitě materiálu. O vývoji těchto faktorů v průběhu interakce nemáme v současnosti dostatek informací, abychom mohli diskutovat jejich vliv na tvorbu LIPSS prvního druhu.

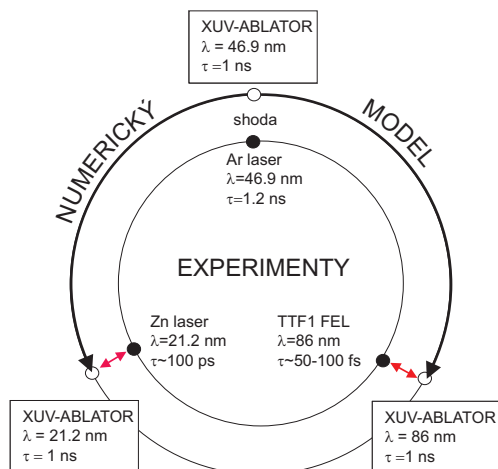
LIPSS 2. druhu, mající původ v neinterferenčních procesech [A1], se při XUV ablací vyskytují častěji. Na strukturách ze vzorků PMMA poškozených femtosekundovým zářením TTF1 (viz Obr. 6.11) se ukazuje, že s rostoucí fluencí se jejich perioda zvětšuje. Může jít o kapilární vlny na tenké vrstvě taveniny. Pokud by byla úhlová frekvence kapilárních kmitů ω dána dobou trvání laserového pulsu nebo interakce, vyplývala by z disperzní relace (2.3) rostoucí závislost periody vln $\Lambda = 2\pi/k$ na hloubce taveniny h .



Obrázek 6.11: LIPSS na površích PMMA ablaovaného zářením laseru TTF1 (98 nm, 30 - 150 fs). Velikost skenu vlevo a uprostřed 10 x 10 mikronů, vpravo 4x4 mikrony. Periody LIPSS-II (267 nm – 413 nm, 600 nm – 700 nm, 500 nm – 1000 nm) rostou s fluencí zleva doprava. Vertikální linie na snímku vpravo jsou pravděpodobně LIPSS prvního druhu s periodou 69 nm.

6.4 Vliv délky pulsu na účinnost XUV ablace

Jeden z hlavních cílů našeho výzkumu XUV ablace byla snaha zjistit, jakou roli při ní hraje délka laserového pulsu. V oblasti dlouhých vlnových délek



Obrázek 6.12: Schéma nepřímého srovnání XUV dat ze zdrojů o různých délkách pulsů, eliminující vliv vlnové délky. Převzato z [A5].

je tento vliv většinou důsledkem termálních efektů a nástupem nelineární absorpce.

Nejprve bylo nutné nalézt způsob, jak při srovnávání experimentálních dat z různých zdrojů odstranit vliv odlišné vlnové délky. Využili jsme nepřímé srovnání (viz schéma 6.12), využívající jako styčný bod numerický model [A5]. Vyšli jsme z kódu ABLATOR, který byl vytvořen [76] a je stále rozvíjen [77] pro simulace poškození stěn ICF reaktorů rentgenovou emisí fúzního plazmatu. Vít Létal tento kód převzal a modifikoval pro interakci v XUV oboru [78].

Bylo potvrzeno [A5], že tento model je schopen počítat účinnosti PMMA nejen pro 1 ns pulsy 46,9 nm záření, ale i pro další zdroje z XUV i rentgenového oboru s pulsy delšími než 100 ps. Následovalo nepřímé srovnání podle schématu 6.12, které však neodhalilo žádný vliv délky pulsu, který by výrazně (s faktorem větším než 2) měnil účinnost XUV ablace. Tento závěr by mohl být dalším důkazem o potlačené úloze netermálních efektů. Nicméně, nedávno provedená a zatím nepublikovaná přímá srovnání mezi ablací PMMA 21,2 nm neonu-podobným zinkovým laserem a 21,7 nm laserem na volných elektronech FLASH naznačují přinejmenším výrazné snížení prahu XUV ablace PMMA při přechodu do sub-pikosekundové oblasti.

Model XUV-ABLATOR není schopen realisticky počítat XUV ablaci Si. Jedním z důvodů selhání je pravděpodobně fakt, že jde pouze o jedno-rozměrný model. Jak jsme ukázali v části 6.1, ablace Si nanosekundovými pulsy zahrnuje výrazné pohyby taveniny v horizontálním směru.

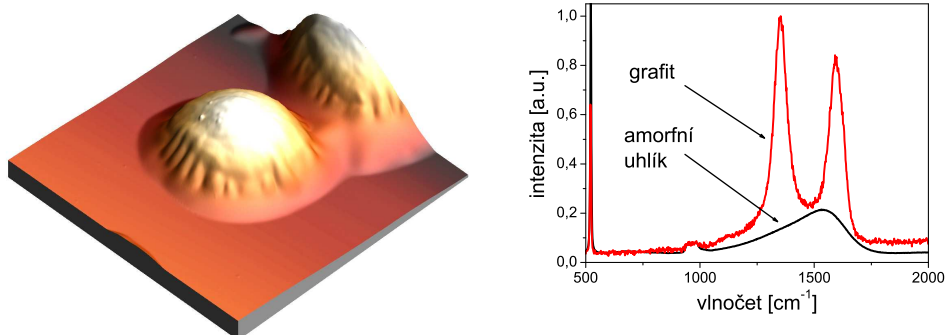
6.5 Poškození vrstev amorfního uhlíku XUV zářením

Pro nastupující generaci rentgenových FEL jsou vyvíjena zrcadla pro totální odraz (grazing incidence), pokrytá tenkými vrstvami amorfního uhlíku (a-C) na vysoce kvalitním křemíkovém substrátu. Soustředili jsme se na otázku, zda a jaké formy poškození mohou vrstvy a-C ohrozit během rutinního provozu krátkovlnného FEL, kde budou vystaveny velmi intenzivnímu sub-pikosekundovému XUV záření, ale i na jejich odolnost vůči delším pulsům.

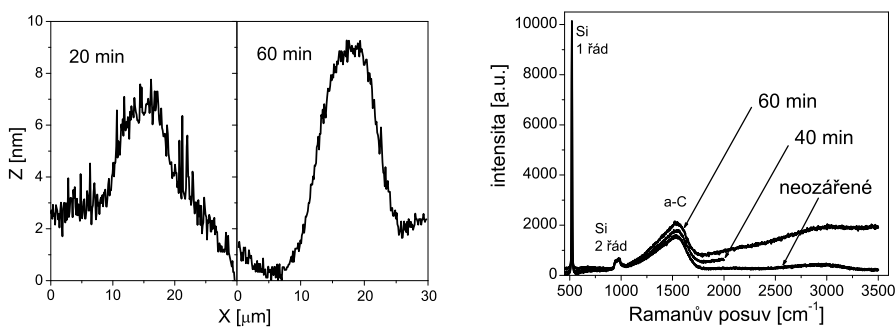
Během experimentů s neonu-podobným zinkovým laserem jsme testovali vrstvy a-C tloušťky 46 nm na Si substrátu, podobné těm, které byly zkoumány již v rámci experimentů na systému TTF1 FEL [53]. V přílohách A4 a A9 [A4, A8] je ukázáno, že při ozáření s fluencí kolem 1 J/cm² vrstva grafitizuje a expanduje do výšky několika μm , viz obrázek 6.13 vlevo. Při přibližně 2x vyšší fluenci došlo k prasknutí výdutě a na odhaleném substrátu byly nalezeny oblasti přetaveného křemíku.

Stejně vzorky byly následně ozářeny svazkem vysokých harmonických v CEA/Saclay. Cílem bylo ověřit, zda grafitizace pozorovaná za výše popsaných podmínek hrozí i při mnohokrát opakovaném ozáření svazky s nízkou fluencí, tedy za podmínek, jakým mají být vystavena pokrytí zrcadel pro totální odraz na XUV/rentgenových laserech.

Ukázalo se, že při ozařování po dobu desítek minut povrch a-C expanduje do výšky jednotek nanometrů, jak je ukázáno na obrázku 6.14 vlevo. Na Ramanových spektrech (viz obrázek 6.14 vpravo) však místo charakteristického rozštěpení Ramanovského pásu a-C pozorujeme vzestup luminiscence na pozadí. Ta je typická pro amorfní uhlík o nižší tvrdosti, tj. s nižším podílem sp³ vazeb. Pozorované změny by mohly být předstupněm grafitizace.



Obrázek 6.13: Poškození vrstvy a-C ozářené 100 ps pulsem 21,2 nm záření s fluencí cca. 1 J/cm². Vlevo) AFM 30 μm x 30 μm, výška boule cca. 4 μm. Vpravo) Ramanovo spektrum ukazující, že boule je tvořena grafitem. Převzato z prací [A4, A8].



Obrázek 6.14: Poškození vrstvy a-C svazkem vysokých harmonických frekvencí s úhrnnou expozicí 2,4 J/cm² (20 minut ozařování) až 7,2 J/cm² (60 minut ozařování). Vlevo) Profily změřené v sobě odpovídajících místech. Vpravo) Ramanova spektra. Převzato z práce [A8].

Kapitola 7

Závěr

V experimentech, o nichž referuje předkládaná disertační práce, jsme se soustředili na charakterizaci ablace (nebo desorpce při nižších fluencích) vybraných materiálů fokusovaným zářením XUV laserů, pracujících v oboru vlnových délek od 21 nm do 98 nm, s délkami pulsů mezi 30 fs a 1,2 ns.

Hlavním cílem byla identifikace rozdílů mezi XUV a dlouhovlnnou (UV-VIS-IR) ablací. Převážně schodné znaky jsme našli v případě křemíku. I v XUV oboru byly pozorovány termální projevy včetně přechodu k explozivnímu vypařování pro nanosekundové laserové pulsy a sloupovitá morfologie povrchů ozářených femtosekundovými pulsy.

Naproti tomu technicky důležité organické polymery PMMA, PI a PTFE, které se v ultrafialovém oboru chovají velmi odlišně, jsou díky podobným absorpčním vlastnostem v XUV ablaovány s podobnou účinností. Na zvýšenou roli netermálních radiačně-chemických procesů při ablací těchto polymerů ukazuje vysoká kvalita a čistota ablaovaného povrchu. Byla také ukázána vysoká opakovatelnost ablace PMMA a její citlivost na lokální modulace fluence.

Výše uvedené vlastnosti zvyšují potenciál XUV ablace pro strukturování povrchů (alespoň v případě polymerů) s rozlišením pod 100 nm. Další pozitivní vlastností může být relativně nižší výskyt periodických struktur známých jako LIPSS, které jsou doprovodným jevem ablace dlouhovlnným zářením. Jejich absenci dáváme do souvislosti s nízkou polarizací nebo nedostatečnou časovou koherencí použitého XUV záření.

Praktickou důležitost mají také pozorování radiačních poškození optických vrstev amorfního uhlíku na křemíku, jimiž jsou pokryta zrcadla pro totální odraz svazků XUV laserů na volných elektronech.

Mezi ostatními publikovanými články naše práce vynikají tím, že shrnují výsledky získané s větším počtem různých zdrojů a dovolují nám vytvořit si ucelenější obraz o chování látek zatížených intenzivním XUV zářením. Rychlý

vývoj XUV laserů i diagnostiky v poslední době dává naději, že bude možno v tomto přístupu pokračovat a že se podaří překonat potíže vyvstávající z rozdílů mezi XUV a dlouhovlnným oborem. Pokrok je patrný především v oblasti laserů na volných elektronech, jejichž vývoj směřuje do oblasti subnanometrových vlnových délek (projekty XFEL v SRN, LCLS v USA).

Použitá literatura

- [1] D. Bäuerle, *Laser Processing and Chemistry*, 3rd ed., Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 2000.
- [2] Booth H. J., Recent applications of pulsed lasers in advanced materials processing, *Thin Solid Films* 453–454: 450–457, 2004.
- [3] Meijer J., Laser beam machining (LBM), state of the art and new opportunities, *J. Mater. Process. Technol.* 149: 2–17, 2004.
- [4] *High-Power Laser Ablation V, Part I*, edited by Claude R. Phipps, Proceedings of SPIE Vol. 5448 (SPIE, Bellinghame, WA, 2004)
- [5] Haglund R. F. Jr., Microscopic and mesoscopic aspects of laser-induced desorption and ablation, *Appl. Surf. Sci.* 96-8: 1, 1996.
- [6] Yoo J. H., Jeong S. H., Greif R., Russo R. E., Explosive change in crater properties during high power nanosecond laser ablation of silicon, *J. Appl. Phys.* 88: 1638 - 1649, 2000.
- [7] Craciun V., Comment on "Evidence for phase-explosion and generation of large particles during high power nanosecond laser ablation of silicon", *Appl. Phys. Lett.* 79: 442 - 443, 2001.
- [8] Craciun V., Bassim N., Singh R. K., Craciun D., Hermann J., Boulmer-Leborgne C., Laser-induced explosive boiling during nanosecond laser ablation of silicon, *Appl. Surf. Sci.* 186: 288-292, 2002.
- [9] Miotello A., Kelly R., Critical assessment of thermal models for laser sputtering at high fluences, *Appl. Phys. Lett.* 67: 3535 - 3537, 1995.
- [10] Dyer P. E., Excimer laser polymer ablation: twenty years on, *Appl. Phys. A* 77: 167-173, 2003.
- [11] Georgiou S., Koubenakis A., Laser-Induced Material Ejection from Model Molecular Solids and Liquids: Mechanisms, Implications, and Applications, *Chem. Rev.* 103: 349-393, 2003.

- [12] Bityurin N., Luk'yanchuk B. S., Hong M. H., Chong T. C., Models for Laser Ablation of Polymers, *Chem. Rev.* 103: 519-552, 2003.
- [13] Paltauf G., Dyer P. E., Photomechanical Processes and Effects in Ablation, *Chem. Rev.* 103: 487-518, 2003.
- [14] Zhigilei L. V., Garrison B. J., Microscopic mechanisms of laser ablation of organic solids in the thermal and stress confinement irradiation regimes, *J. Appl. Phys.* 88: 1281 - 1298, 2000.
- [15] Dou K., Wu J., Parkhill R. L., Knobbe E. T., Femtosecond studies of highly excited electrons in metals, *J. Lumin.* 94-95: 617-621, 2001.
- [16] Hashida M., Semerok A. F., Gobert O., Petite G., Izawa Y., Wagner J. F., Ablation threshold dependence on pulse duration for copper, *Appl. Surf. Sci.* 197-198: 862-867, 2002.
- [17] Siegal Y., Glezer E. N., Huang L., Mazur E., Laser-induced phase transitions in semiconductors, *Annu. Rev. Mater. Sci.* 25, 223-47, 1995.
- [18] Surandam S. K., Mazur E., Inducing and probing non-thermal transitions in semiconductors using femtosecond laser pulses, *Nature materials* 1: 217-224, 2002.
- [19] Stoian R., Rosenfeld A., Ashkenasi D., Hertel I. V., Bulgakova N. M., Campbell E. E. B., Surface Charging and Impulsive Ion Ejection during Ultrashort Pulsed Laser Ablation, *Phys. Rev. Lett.* 88: 097603, 2002.
- [20] Guoscheng Z., Fauchet P. M., Siegman A. E., Growth of spontaneous periodic surface structures on solids during laser illumination, *Phys. Rev. B* 26: 5366 - 5381, 1982.
- [21] Sipe J. E., Young J. F., Preston J. S., van Driel H. M., Laser-induced periodic surface structure. I. Theory, *Phys. Rev. B* 27: 1141 - 1154, 1983.
- [22] Akhmanov S. A., Emelyanov V. I., Koroteev N. I., Seminogov V. N., *Usp. Fiz. Nauk* 147: 675, 1985.
- [23] Gorodetsky G., Kanicki J., Kazyaka T., Meicher R. L., Far UV pulsed laser melting of silicon, *Appl. Phys. Lett.* 46: 547, 1985.
- [24] „Ground levels and ionization energies for the neutral atoms“, Physical Reference Data, National Institute of Standards and Technology, USA, [www: http://physics.nist.gov/PhysRefData/](http://physics.nist.gov/PhysRefData/)
- [25] McMaster W. H., Kerr Del Grande N., Mallett J. H., Hubbell J. H., Compilation of X-Ray Cross Sections, Lawrence Livermore National Laboratory Report, [www: http://cars9.uchicago.edu/newville/mcbook/](http://cars9.uchicago.edu/newville/mcbook/)

- [26] Henke B.L., Gullikson E.M., Davis J.C., X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E=50\text{-}30000$ eV, $Z=1\text{-}92$, *At. Data Nucl. Data Tables* 54: 181-342, 1993.
- [27] Attwood D., *Soft X-rays And Extreme Ultraviolet Radiation - Principles and Applications*, Cambridge University Press, 1999.
- [28] Reinkoster A., Korica S., Prumper G., Viefhaus J., Godehusen K., Schwarzkopf O., Mast M., Becker U., The photoionization and fragmentation of C_{60} in the energy range 26–130 eV, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 37: 2135–2144, 2004.
- [29] Kwark Y., Bravo-Vasquez J. P., Chandhok M., Cao H., Deng H., Gullikson E., Ober C. K., Absorbance measurement of polymers at extreme ultraviolet wavelength: Correlation between experimental and theoretical calculations, *J. Vac. Sci. Technol. B* 24: 1822 - 1826, 2006.
- [30] Keenan R., Lewis C. L. S., Wark J. S., Wolfrum E., Measurements of the XUV transmission of aluminium with a soft x-ray laser, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 35: L447–L451, 2002.
- [31] Fajardo M., Zeitoun P., Gauthier J.-C., Hydrodynamic simulation of XUV laser-produced plasmas, *Eur. Phys. J. D* 29: 69–76, 2004.
- [32] Gibbon P., Förster E., Short-pulse laser-plasma interactions, *Plasma Phys. Control. Fusion* 38: 769-793, 1996.
- [33] Wabnitz et al. Multiple ionization of atom clusters by intense soft x-rays from a free-electron laser, *Nature* 420: 482-485, 2002.
- [34] Schulz J., Wabnitz H., Laarmann T., Gurtler P., Laasch W., Swiderski A., Moller Th., de Castro A.R.B., Energy absorption of free rare gas clusters irradiated by intense VUV pulses of a free electron laser, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 507: 572–576, 2003.
- [35] Ziaja B., van der Spoel D., Szoke A., Hajdu J., Auger-electron cascades in diamond and amorphous carbon, *Phys. Rev. B* 64: 214104, 2001.
- [36] Timneanu N., Caleman C., Hajdu J., van der Spoel D., Auger electron cascades in water and ice, *Chem. Phys.* 299: 277–283, 2004.
- [37] Moad C. L., Winzor D. J., Quantitative characterization of radiation degradation in polymers by evaluation of scission and cross-linking yields. *Prog. Polym. Sci.* 23, 759-813, 1998.

- [38] Maida O., Kohma N., Ueno M., Shibuya A., Kanashima T., Okuyama M., Ohashi H., Evaporation and Expansion of Poly-tetra-fluor-ethylene Induced by Irradiation of Soft X-Rays from a Figure-8 Undulator, *Jpn. J. Appl. Phys.* 40, 2435-2439: 2001.
- [39] Daido H., Review of soft x-ray laser researches and developments, *Rep. Prog. Phys.* 65: 1513-1576, 2002.
- [40] Tallents G. J., The physics of soft x-ray lasers pumped by electron collisions in laser plasmas, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 36, R259–R276, 2003.
- [41] Rocca J. J., Table-top soft x-ray lasers, *Rev. Sci. Instrum.* 70: 3799-3827, 1999.
- [42] Rus B., Mocek T., Präg A. R., Kozlová M., Jamelot G., Carillon A., Ros D., Joyeux D., Phalippou D., Multimillijoule, highly coherent x-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification, *Phys. Rev. A: At. Mol. Opt. Phys.* 66: 063806, 2002.
- [43] Kuba J., *Experimental and Theoretical Study of X-ray Lasers Pumped by an Ultra-Short Laser Pulse: Transient Pumping of Ni-like Ag Ions*, PhD thesis CTU Prague, 2001.
- [44] Rossbach J., *Linac based free-electron laser*, TESLA-FEL Report 2004-08, 2008.
- [45] Feldhaus J., Arthur J., Hastings J. B., X-ray free-electron lasers, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 38: S799–S819, 2005.
- [46] Saleh E. A., Teich M. C., *Základy fotoniky, 1. díl*, Matfyzpress, 1994.
- [47] Agostini P., DiMauro L. F., The Physics of attosecond light pulses, *Rep. Prog. Phys.* 67: 813-855, 2004.
- [48] Reider G. A., XUV attosecond pulses: generation and measurement., *J. Phys. D: Appl. Phys.* 37: R37-R48, 2004.
- [49] Zeitoun Ph., Faivre G., Sebban S., Mocek T., Hallou A., Fajardo M., Aubert D., Balcou Ph., Burgy F., Douillet D., Kazamias S., de Lacheze-Murel G., Lefrou T., le Pape S., Mercere P., Merdji H., Morlens A.S., Rousseau J. P., Valentin C., A high- intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam, *Nature* 431: 426-429, 2004.
- [50] Lambert G., Bougeard M., Boutu W., Breger P., Carre B., Garzella D., Labat M., Merdji H., Monchicourt P., Salieres P., Couprie M.E., Chubar O., Lambert G., Hara T., Kitamura H., Shintake T., Seeding the FEL of the SCSS Phase 1 facility with the 13th laser harmonic of a Ti: Sa laser produced in gas, *Proceedings of EPAC 2006*

- [51] Sobierajski R., *Interaction of the free electron laser's femtosecond pulses with surfaces of solids*, PhD. thesis, Warsaw University of Technology, 2005.
- [52] Pełka J. B., Andrejczuk A., Reniewicz H., Schell N., Krzywiński J., Sobierajski R., Wawro A., Zytkeiwicz Z. R., Klinger D., Juha L., Structure modifications in silicon irradiated by ultra-short pulses of XUV free electron laser, *J. Alloys Compd.* 382: 264–270, 2004.
- [53] Steeg B., Juha L., Feldhaus J., Jacobi S., Sobierajski R., Michaelsen C., Andrejczuk A., Krzywinski J., Total reflection amorphous carbon mirrors for VUV Free Electron Laser, *Appl. Phys. Lett.* 84: 657-659, 2004.
- [54] Artyukov I. A., Benware B. R., Vinogradov A. V., Kas'yanov Yu. S., Kondratenko V. V., Macchietto C. D., Ozols A., Rocca J. J., Chilla J. L. A., Focusing the beam of a compact, repetitively pulsed x-ray laser to study the interaction of radiation with metallic targets and x-ray reflectometry, *Quantum Electronics* 30: 328-332, 2000.
- [55] Chalupský J., Juha L., Kuba J., Cihelka J., Hájková V., Koptyaev S., Krása J., Velyhan A., Bergh M., Coleman C., Hajdu J., Bionta R. M., Chapman H., Hau-Riege S. P., London R. A., Jurek M., Krzywinski J., Nietubyc R., Pelka J. B., Sobierajski R., Meyer-ter-Vehn J., Krenz-Tronnier A., Sokolowski-Tinten K., Stojanovic N., Tiedtke K., Toleikis S., Tschentscher T., Wabnitz H., Zastra U., Characteristics of focused soft X-ray free-electron laser beam determined by ablation of organic molecular solids, *Opt. Express*, podáno do redakce.
- [56] Stojanovic N., von der Linde D., Sokolowski-Tinten K., Zastra U., Perner F., Förster E., Sobierajski R., Nietubyc R., Jurek M., Klinger D., Pelka J., Krzywinski J., Juha L., Cihelka J., Velyhan A., Koptyaev S., Hajkova V., Chalupsky J., Kuba J., Tschentscher T., Toleikis S., Düsterer S., Redlin H., Ablation of solids using a femtosecond extreme ultraviolet free electron laser, *Appl. Phys. Lett.* 89: 241909, 2006.
- [57] Makimura T., Miyamoto H., Kenmotsu Y., Murakami K., Niino H., Direct micromachining of quartz glass plates using pulsed laser plasma soft x-rays, *Appl. Phys. Lett.* 86: 103111, 2005.
- [58] Makimura T., Uchida S., Murakami K., Niino H., Silica nanomachining using laser plasma soft x rays, *Appl. Phys. Lett.* 89: 101118, 2006.
- [59] Bartnik A., Fiedorowicz H., Jarocki R., Juha L., Kostecki J., Rakowski R., Szczurek M., Strong temperature effect on X-ray photo-etching of polytetrafluoroethylene using a 10Hz laser-plasma radiation source based on a gas puff target, *Appl. Phys. B* 82: 529–532, 2006.

- [60] Viskup R., Juha L., Krása J., Influence of irradiation conditions of polytetrafluorethylene ablation induced by soft x-rays emitted from laser-produced plasma, *acta physica slovacica* 54, 277 - 284, 2004.
- [61] Juha L., Krasa J., Cejnarova A., Chvostova D., Vorlicek V., Krzywinski J., Sobierajski R., Andrejczuk A., Jurek M., Klinger D., Fiedorowicz H., Bartnik A., Pfeifer M., Kubat P., Pina L., Kravarik J., Kubes P., Bakshaev Y. L., Korolev V. D., Chernenko A. S., Ivanov M. I., Scholz M., Ryc L., Feldhaus J., Ullschmied J., Boody F. P., Ablation of various materials with intense XUV radiation, *Nucl. Instr. Meth. In Phys. Research A* 507: 577-581, 2003.
- [62] Richter M., Gottwald A., Kroth U., Sorokin A. A., Bobashev S. V., Shmanok L. A., Feldhaus J., Gerth Ch., Steeg B., Tiedtke K., Treusch R., Measurement of gigawatt radiation pulses from a vacuum and extreme ultraviolet free-electron laser, *Appl. Phys. Lett.* 83: 2970-2972, 2003.
- [63] Bytchkov A., Fateev A. A., Feldhaus J., Hahn U., Hesse M., Jastrow U., Kocharyan V., Lebedev N. I., Matyushevskiy E. A., Saldin E. L., Schneidmiller E. A., Shabunov A. V., Sytchev K. P., Tiedtke K., Treusch R., Yurkov M. V., Development of MCP-based photon diagnostics at the TESLA Test Facility at DESY, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 528: 254-257, 2004.
- [64] Juha L., Krasa J., Prag A., Cejnarova A., Chvostova D., Rohlena K., Jungwirth K., Kravarik J., Kubes P., Bakshaev Y. L., Chernenko A. S., Korolev V. D., Tumanov V. I., Ivanov M. I., Bernardinello A., Ullschmied J., Boody F. P., Ablation of poly(methyl methacrylate) by a single pulse of soft X-rays emitted from Z-pinch and laser-produced plasmas, *Surf. Rev. Lett.* 9: 347-352, 2002.
- [65] Jungwirth K., Cejnarova A., Juha L., Kralikova B., Krasa J., Krousky E., Krupickova P., Laska L., Masek K., Mocek T., Pfeifer M., Prag A., Renner O., Rohlena K., Rus B., Skala J., Straka P., Ullschmied J., The Prague Asterix Laser System, *Physics of Plasmas* 8: 2495-2501, 2001.
- [66] Mocek T., Rus B., Prag A. R., Kozlová M., Jamelot G., Carillon A., Ros D., Beam properties of a deeply saturated, half-cavity zinc soft-x-ray laser, *J. Opt. Soc. Am. B* 20: 1386-1391, 2003.
- [67] Prag A. R., Mocek T., Kozlová M., Rus B., Jamelot G., Ros D., Study of the stability of beam characteristics of the neon-like Zn X-ray laser using a half cavity, *Eur. Phys. J. D* 22: 31-40, 2003.
- [68] Rocca J. J., Filevich J., Hammarsten E. C., Jankowska E., Benware B., Marconi M. C., Luther B., Vinogradov A., Artiukov I., Moon S., Shlyaptsev V. N., Extremely compact soft X-ray lasers based on capillary discharges, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 507: 515-522, 2003.

- [69] Benware B. R. et al., *Opt. Lett.* 24: 1714, 1999.
- [70] Ayvazyan V. et al., A new powerful source for coherent VUV radiation: Demonstration of exponential growth and saturation at the TTF free-electron laser, *Eur. Phys. J. D* 20: 149-156, 2002.
- [71] Sobierajski R., Krzywinski J., Andrejczuk A., Hahn U., Treusch R., Jurek M., Klinger D., Nietubyc R., Pelka J. B., Reniewicz H., Sikora M., Sobala W., 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.
- [72] Kubínek, R., Vůjtek, M., Mašláň, M., *Mikroskopie skenující sondou*, 1. vydání, Univerzita Palackého Olomouc, 2003.
- [73] Bonse J., Baudach S., Krüger J., Kautek W., Lenzner M., Femtosecond laser ablation of silicon—modification thresholds and morphology, *Appl. Phys. A* 74: 19-25, 2002.
- [74] Dolgaev S.I., Lavrishev S.V., Lyalin A.A., Simakin A.V., Voronov V.V., Shafeev G.A., Formation of conical microstructures upon laser evaporation of solids, *Appl. Phys. A* 73: 177–181, 2001.
- [75] Ischebeck R., Feldhaus J., Gerth Ch., Saldin E., Schmuser P., Schneidmiller E., Steeg B., Tiedtke K., Tonutti M., Treusch R., Yurkov M., Study of the transverse coherence at the TTF free electron laser, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 507: 175–180, 2003.
- [76] Anderson A. T.: X-Ray Ablation Measurements and Modeling for ICF Applications. PhD Thesis, University of California at Berkeley, Berkeley 1996; Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-LR-125352 (1996)
- [77] Reyes S., Latkowski J. F., Abbott R. P., Stein W., Simulation of X-ray Irradiation on Optics and Chamber Wall Materials for Inertial Fusion Energy, report UCRL-JC-55371, Lawrence Livermore National Laboratory (2003)
- [78] Létal V., *Počítačové modelování rentgenové ablace pevných látek: Analýza, testování, úpravy a využití kódu ABLATOR*, diplomová práce (FJFI ČVUT, 2004)

Odkazy na autorovy práce

- [A1] Bittner M., Juha L., Vacík J., Periodické mikrostruktury I: Strukturování elektromagnetickým zářením, *Čes. čas. fyz.* 54(6): 331-341, 2004.
- [A2] Fiedorowicz H., Bartnik A., Bittner M., Juha L., Krása J., Kubát P., Mikolajczyk J., Rakowski R., Micromachining of organic polymers by direct photo-etching using a laser plasma X-ray source, *Microelectron. Eng.* 73-74: 336-339, 2004.
- [A3] Mocek T., Rus B., Stupka M., Kozlová M., Prag A. R., Polan J., Bittner M., Sobierajski R., Juha L., Focusing a multimillijoule soft x-ray laser at 21 nm, *Appl. Phys. Lett.* 89: 051501, 2006.
- [A4] Bittner M., Juha L., Krása J., Otčenášek Z., Rus B., Kozlová M., Polan J., Stupka M., Prag A. R., Sobierajski R., Ryc L., Ablation of Materials by 21.2-nm Laser, *WDS'04 Proceedings of Contributed Papers, Part II*: 304-309, 2004.
- [A5] Juha L., Bittner M., Chvostová D., Krása J., Kozlová M., Polan J., Prag A. R., Rus B., Stupka M., Feldhaus J., Letal V., Otcenasek Z., Krzywinski J., Pelka J. B., Andrejczuk A., Sobierajski R., Ryc L., Boody F. P., Fiedorowicz H., Bartnik A., Mikolajczyk J., Rakowski R., Kubát P., Pína L., Horváth M., Grisham M. E., Vaschenko G. O., Menoni C. S., Rocca J. J., Short-wavelength ablation of molecular solids: pulse duration and wavelength effects, *J. Microlith. Microfab. Microsyst.* 4(3): 033007, 2005.
- [A6] Krzywinski J., Sobierajski R., Jurek M., Nietubyc R., Pelka J. B., Juha L., Bittner M., Létal V., Vorlíček V., Andrejczuk A., Feldhaus J., Saldin E. L., Schneidmiller E. A., Treusch R., Yurkov M. V., Keitel B., Conductors, semiconductors and insulators irradiated with short-wavelength free-electron laser, *J. Appl. Phys.* 101: 043107, 2007.
- [A7] Juha L., Bittner M., Chvostová D., Krása J., Otčenášek Z., Prag A. R., Ullschmied J., Pientka Z., Krzywinski J., Pelka J. B., Wawro A., Grisham

M. E., Vaschenko G., Menoni C. S., Rocca J. J., Ablation of organic polymers by 46.9-nm-laser radiation, *Appl. Phys. Lett.* 86: 034109, 2005.

[A8] Bittner M., Wild J., Juha L., Vorlíček V., Rus B., Stupka M., Kozlová M., Polan J., Merdji H., Guizard S., da Grazia M., Gaudin J., Carré B., Krzywinski J., Nietubyc R., Sobierajski R., Stormer M., Jacobi S., Michaelsen C., Wiesmann J., Steeg B., Feldhaus J., XUV/X-ray Radiation Damage to Amorphous-Carbon Optical Coatings, *WDS'05 Proceedings of Contributed Papers Part II*: 373-376, 2005.

Přílohy: Původní práce autora a spolupracovníků

| | |
|------|-----|
| [A1] | 64 |
| [A2] | 78 |
| [A3] | 84 |
| [A4] | 90 |
| [A5] | 98 |
| [A6] | 112 |
| [A7] | 118 |
| [A8] | 124 |

[A1]

Bittner M., Juha L., Vacík J., Periodické mikrostruktury
I: Strukturování elektromagnetickým zářením, *Čes. čas.
fyz.* 54(6): 331-341, 2004.

[A2]

Fiedorowicz H., Bartnik A., Bittner M., Juha L., Krása J., Kubát P., Mikolajczyk J., Rakowski R., Micromachining of organic polymers by direct photo-etching using a laser plasma X-ray source, *Microelectron. Eng.* 73-74: 336-339, 2004.

[A3]

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

[A4]

Bittner M., Juha L., Krása J., Otčenášek Z., Rus B., Kozlová M., Polan J., Stupka M., Prag A. R., Sobierajski R., Ryc L., Ablation of Materials by 21.2-nm Laser, *WDS'04 Proceedings of Contributed Papers, Part II*: 304-309, 2004.

[A5]

Juha L., Bittner M., Chvostová D., Krása J., Kozlová M., Polan J., Präg A. R., Rus B., Stupka M., Feldhaus J., Letal V., Otcenasek Z., Krzywinski J., Pelka J. B., Andrejczuk A., Sobierajski R., Ryc L., Boody F. P., Fiedorowicz H., Bartnik A., Mikolajczyk J., Rakowski R., Kubát P., Pína L., Horváth M., Grisham M. E., Vaschenko G. O., Menoni C. S., Rocca J. J., Short-wavelength ablation of molecular solids: pulse duration and wavelength effects, *J. Microlith. Microfab. Microsyst.* 4(3): 033007, 2005.

[A6]

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

[A7]

Juha L., Bittner M., Chvostová D., Krása J., Otčenášek Z., Prag A. R., Ullschmied J., Pientka Z., Krzywinski J., Pelka J. B., Wawro A., Grisham M. E., Vaschenko G., Menoni C. S., Rocca J. J., Ablation of organic polymers by 46.9-nm-laser radiation, *Appl. Phys. Lett.* 86: 034109, 2005.

[A8]

Bittner M., Wild J., Juha L., Vorlíček V., Rus B., Stupka M., Kozlová M., Polan J., Merdji H., Guizard S., da Gra-
zia M., Gaudin J., Carré B., Krzywinski J., Nietubyc
R., Sobierajski R., Stormer M., Jacobi S., Michaelsen C.,
Wiesmann J., Steeg B., Feldhaus J., XUV/X-ray Radi-
ation Damage to Amorphous-Carbon Optical Coatings,
WDS'05 Proceedings of Contributed Papers Part II:
373-376, 2005.

