

ODDZIAŁYWANIE SILNYCH IMPULSÓW LASERA XUV FEL Z MATERIAŁEM STAŁYM

Jerzy B. Pelka* i Ryszard Sobierajski

Instytut Fizyki PAN, al. Lotników 32/46, 02-668 Warszawa

Streszczenie: W pracy omówiono podstawowe procesy zachodzące w wyniku oddziaływania ciał stałych z silnymi femtosekundowymi impulsami lasera na swobodnych elektronach pracującego w zakresie ultrafioletu próżniowego XUV. Opisano zbudowaną z udziałem autorów stację doświadczalną FELIS przeznaczoną do badań własności optycznych i zniszczeń próbek izolatorów, półprzewodników i metali przy użyciu promieniowania lasera XUV FLASH w Hamburgu i podano przykłady badań oddziaływania silnych impulsów XUV wytwarzanych przez laser FEL z wybranymi materiałami.

Interaction of strong XUV FEL laser pulses with solids.

Abstract: In the present paper principal processes induced in solids as a result of irradiation by VUV and XUV FLASH Free Electron Laser pulses are discussed. The experimental station, FELIS, constructed to study the optical properties and damage processes of insulators, semiconductors and solids with XUV FLASH pulses is briefly described. Experimental results of absorption coefficients as well as damage studied in chosen materials are shown and discussed.

* e-mail: pelkay@ifpan.edu.pl

1. Wstęp

Światło wytwarzane przez współczesny synchrotron elektronowy charakteryzuje się, jak wiadomo, natężeniem miliony razy silniejszym od promieniowania emitowanego z innych źródeł konwencjonalnych (poza laserami), wysokim stopniem kolimacji i polaryzacji oraz ciągłym widmem w bardzo szerokim zakresie energii[†] [1]. Niezwykłe cechy promieniowania synchrotronowego umożliwiły poznanie wielu fundamentalnych własności atomów, molekuł i ciał stałych torując drogę szybkiemu postępowi nauki i technologii, który nie byłby osiągalny przy użyciu tylko klasycznych źródeł laboratoryjnych.

Rozwój źródeł światła od wieków był ściśle związany z poszerzaniem możliwości badawczych w fizyce, chemii i biologii, stymulując jednocześnie rozwój technologii. I chociaż promieniowanie wytwarzane przez synchrotrony będzie z pewnością jeszcze przez wiele lat zajmować poczesne miejsce w instrumentarium nauki, to nieustanny wysiłek konstruktorów zrodził u progu XXI wieku jeszcze jaśniejsze od synchrotronu źródło promieniowania - laser na swobodnych elektronach (*FEL – Free Electron Laser*). W odróżnieniu od synchrotronów, lasery FEL są źródłami przestrzajalnymi emitującymi spójne promieniowanie

monochromatyczne w krótkich impulsach o czasie trwania od kilku do setek femtosekund. Szczytowe natężenie światła w impulsie może być ponad dziewięć rzędów wielkości większe od natężenia emitowanego z najsilniejszych źródeł synchrotronowych trzeciej generacji. Na świecie działa już kilkanaście takich urządzeń emitując światło w różnych zakresach widmowych od podczerwieni do ultrafioletu próżniowego. Zasadę działania i charakterystykę tych nowych źródeł promieniowania można znaleźć np. w pracy [2] i w literaturze tam cytowanej.

Lasery FEL promieniujące w zakresie fal krótszych, od ultrafioletu próżniowego w dół, stanowią przedmiot szczególnego zainteresowania nauki. Spowodowane jest to faktem, że w tym zakresie widma fal elektromagnetycznych nie istniały do tej pory żadne silne źródła emitujące promieniowanie w tak krótkich impulsach. Dopiero dzięki krótkofalowym laserom FEL staje się możliwe zbadanie wielu nowych zjawisk i szybkich procesów związanych z oddziaływaniem z materią silnych wiązek fotonów o energiach większych od przerwy energetycznej w jakimkolwiek materiale.

Pierwszy na świecie i najsilniejszy obecnie laser na swobodnych elektronach FLASH[‡] emitujący w zakresie energii fotonów 10 – 100 eV rozpoczął pracę w ośrodku naukowym Niemieckiego Synchrotronu Elektronowego DESY w Hamburgu w kwietniu 2000 r. Jego działanie oparto

[†] Widmo promieniowania undulatorów, często spotykanych synchrotronowych „urządzeń wstawkowych” (ang. *insertion devices*) składa się z dyskretnych długości fal. Promieniowanie synchrotronowe o widmie ciągłym wytwarzane jest w magnesach zakrzywiających (ang. *Bending magnets*) i w wigglerach (inny rodzaj „urządzeń wstawkowych”).

[‡] Laser rozpoczął pracę w 2000 r., nazywano go wówczas TTF FEL, VUV FEL lub XUV FEL. Nazwę FLASH przyjęto w roku 2005, kiedy urządzenie udostępniono jako źródło badawcze.

na efekcie „samowzmacniającej się” emisji spontanicznej (*SASE – Self Amplified Spontaneous Emission*), omówionej zwięźle w pracy [3]. Lasery krótkofalowe oparte na efekcie SASE można lapidarnie opisać jako połączenie liniowego akceleratora superrelatywistycznych elektronów z długim undulatorem. Do wzbudzenia akcji laserowej nie jest w nich potrzebna optyczna wnęka rezonansowa; długość fali emitowanego promieniowania determinuje energia kinetyczna elektronów i parametry undulatora. Efekt SASE nadaje się idealnie jako podstawa konstrukcji przestrajalnego lasera rentgenowskiego [3].

Moc szczytowa impulsu lasera FLASH trwającego około 30 fs dochodzi do 1 GW. Uzyskiwane gęstości mocy mogą po zogniskowaniu przekraczać 10^{14} W/cm².

Niniejszą pracę poświęcono zagadnieniom oddziaływania silnych impulsów promieniowania wytwarzanego przez laser FLASH z materią stałą. Przytoczono rezultaty badań zachowania się i modyfikacji własności materiałów oraz ich zniszczeń w wyniku naświetlenia impulsami lasera. Większość pomiarów przeprowadzono z wykorzystaniem specjalnie w tym celu skonstruowanej stacji eksperymentalnej FELIS opisanej w dalszej części pracy.

2. Oddziaływanie silnego promieniowania krótkofalowego z materią stałą

Krótkie i silne impulsy lasera XUV-FEL mogą modyfikować strukturę i własności dowolnych materiałów. Stanowią jednocześnie doskonałe narzędzie do badania dynamiki procesów oddziaływania silnego promieniowania z materią, w tym dynamiki nierównowagowych stanów przejściowych. Badanie procesów absorpcji, transmisji i redystrybucji energii w materii stałej poddanej działaniu impulsu oraz zniszczeń i modyfikacji materiałów, szczególnie tych stosowanych w optyce silnych wiązek, ma szczególne znaczenie dla rozwoju i zastosowań krótkofalowych laserów FEL.

Obrazowanie biologiczne, obejmujące również eksperymenty dyfrakcyjne mające na celu określenie struktury i dynamiki makromolekuł aktywnych biologicznie, planowane po uruchomieniu za kilka lat laserów X-FEL [4], wymagać będzie opracowania nowych materiałów i metod. Konieczne będzie na przykład zaprojektowanie nowych urządzeń optycznych zdolnych w sposób stabilny ogniskować wiązkę lasera do rozmiarów rzędu nanometrów przy ekstremalnie wysokich natężeniach impulsów. Możliwość konstruowania takiej optyki zależeć będzie od zrozumienia mechanizmów oddziaływania silnych impulsów z materiałami. Oczekuje się także, że badania dynamiki procesów indukowanych przez impulsy w materiałach wspomogą opracowanie metod wyznaczania struktury wielkich molekuł za pomocą lasera rentgenowskiego.

Mechanizmy zniszczeń indukowanych silnymi femtosekundowymi impulsami fotonów w zakresie XUV zależą od części energii impulsu zaabsorbowanej w materiale. Fotony o energiach z zakresu ultrafioletu próżniowego oddziałują niezwykle silnie z materią, co się przejawia m. in. bardzo małą głębokością absorpcji. Dla energii fotonu rzędu kilkunastu eV głębokość absorpcji dla wszystkich materiałów nie przekracza kilku nanometrów. Dla

wyższych energii fotonów XUV głębokość absorpcji wprowadzie rośnie, jednak i w takim przypadku przezroczyste dla promieniowania mogą być jedynie warstwy materiału o nanometrycznych grubościach. Można więc przyjąć, że cała energia wiązki wnikałej w ciało stałe jest absorbowana w niewielkiej objętości tuż pod jego powierzchnią.

Impulsy ze źródeł o małej mocy szczytowej powodują wyrzucanie części materiału z napromieniowanej powierzchni poprzez indukowaną przez fotony desorpcję. Każdy foton XUV ma dostateczną energię aby rozerwać dowolne wiązanie chemiczne. Fotony zaabsorbowane w obszarze przypowierzchniowym mogą więc fotochemicznie „rozdrobnić” materiał próbki na niewielkie fragmenty, które zostają wyrzucone poza jego powierzchnię. Promieniowanie o małym szczytowym natężeniu powoduje wyrzucenie materiału jedynie z samej powierzchni i z bardzo cienkiej warstwy przypowierzchniowej. Zniszczenia tego rodzaju często są określane jako zniszczenia jednofotonowe.

Sytuacja jest inna, gdy materiał poddamy działaniu krótkiego, femtosekundowego impulsu o dużej mocy szczytowej. W tym przypadku próbka w bardzo krótkim czasie otrzymuje lokalnie dużą dawkę promieniowania, określoną przez energię impulsu i głębokość absorpcji w danym materiale. Dochodzi do wielkiej liczby interakcji fotonów z materiałem próbki. Prowadzi to w konsekwencji do dekompozycji struktury we względnie grubej warstwie materiału. Ponieważ część zaabsorbowanej energii jest przekształcana w energię cieplną, warstwa ta jest i grzana i modyfikowana chemicznie przez promieniowanie. W nagrzanym i pofragmentowanym obszarze materiału tworzy się nowa, niejednorodna faza, której znaczna część, wobec dużego nadmiaru zaabsorbowanej energii wyrzucona zostaje poza próbkę.

Procesy zachodzące w materiale w wyniku naświetlenia femtosekundowym impulsem krótkofalowym są dość złożone i, wobec niedostatku odpowiednich źródeł, dotąd mało poznane. Dopiero uruchomienie nowego źródła, jakim jest laser XUV-FEL pozwoliło rozpocząć systematyczne prace nad ich dokładniejszym zbadaniem. Jednym z bardziej istotnych, tak z punktu widzenia poznawczego, jak i przyszłych zastosowań nowych źródeł FEL jest fakt, iż bezpośrednio po zaabsorbowaniu energii impulsu w materiale wytwarza się stan, w którym następuje „rozdzielenie” dynamiki atomów sieci krystalicznej, reagującej z względnie dużą bezwładnością, oraz mobilnych elektronów.

Szczególnie dobrze widać to w materiałach przewodzących, gdzie, jak wykazały m. in. badania z udziałem autorów tego artykułu, w krótkim czasie trwania impulsu z powodzeniem stosuje się model dwutemperaturowy, w którym stan termodynamiczny elektronów charakteryzuje się temperaturą sięgającą prawie 10^5 K, natomiast temperatura sieci krystalicznej jest rzędu temperatury pokojowej [5]. Czas relaksacji, po którym cały układ można scharakteryzować ponownie za pomocą jednej temperatury, jest rzędu pikosekund.

W wyniku oddziaływania femtosekundowych impulsów o dużej intensywności z ciałem stałym może powstać, wskutek masowej jonizacji atomów sieci krystalicznej, silnie

nierównowagowy stan tzw. ciepłej gęstej materii (WDM - *Warm Dense Matter*), zwany także obszarem ciepłej gęstej plazmy. W stanie WDM, przy gęstości właściwej dla ciał stałych, a nawet przy zachowaniu, w krótkim początkowym okresie czasu, struktury krystalicznej występuje w materiale wysoki stopień jonizacji atomów. Korzystając z definicji parametru sprzężenia $\Gamma = Z^2 e^2 / (r_d k T)$, który wyraża stosunek energii potencjalnej oddziaływania międzyjonowego $Z^2 e^2$ (Z jest stopniem jonizacji) do energii cieplnej określonej w funkcji odległości między atomami, r_d , dla obszaru występowania ciepłej plazmy przyjmuje się wartości $\Gamma > 1$. Materia WDM jest zbyt „gorąca”, by można ją było opisywać za pomocą klasycznych teorii materii skondensowanej. W tym stanie ładunki nie mogą być już traktowane jako odseparowane ładunki punktowe, lecz są z sobą silnie skorelowane. Potencjały jonizacyjne stają się płytsze, a struktura energetyczna jonów ulega modyfikacji. W takich warunkach efekty zależne od gęstości ośrodka zaczynają dominować. Występuje np. zjawisko jonizacji pod wpływem ciśnienia, polegające na tym, że orbity elektronów o wyższych stanach kwantowych nakładają się na siebie tak silnie, że stają się uwspólnione i elektrony te można traktować jak swobodne. Równanie stanu takiego układu staje się niezwykle złożone, w rezultacie nawet modelowanie za pomocą szybkich komputerów jest czasochłonne i daje niejednoznaczne wyniki.

Dotychczas eksperymentalne badanie materii w stanie WDM było utrudnione ze względu na brak odpowiednich źródeł. Lasery XUV-FEL i, w niedalekiej przyszłości, XFEL są w stanie dostarczyć jednorodnej energii potrzebnej do powstania stanu WDM w bardzo krótkim impulsie, rzędu dziesiątek femtosekund. Pozwala to w sposób kontrolowany badać stan i dynamikę tej zdegenerowanej formy plazmy. Zainteresowanie, jakie budzą badania nad stanem WDM związane jest z faktem, że powstaje on nie tylko w układach, które z początkowego „normalnego” stanu stałego przekształcają się w plazmę, lecz występuje także w jądrach dużych planet, w białych karłach, towarzyszy również fuzji jądrowej. Tak więc zbadanie procesów tworzenia i dynamiki WDM przyczyni się do rozwoju wielu dziedzin nauki i technologii, od zrozumienia struktury i procesów zachodzących z jego udziałem poprzez wytwarzanie i obróbkę materiałów, aż do budowy elektrowni termojądrowych.

Impulsy o takiej charakterystyce, jaką wytwarzają lasery XUV-FEL i X-FEL posłużą też jako wydajne narzędzie do wzbudzenia stanów nierównowagowych w ciele stałym lub do badania takich stanów i procesów w eksperymentach typu *pump and probe*. Dynamika wielu szybkich procesów może być badana np. metodą rejestrowania ewolucji czasowej refleksów dyfrakcyjnych dzięki zastosowaniu rentgenowskich impulsów femtosekundowych, które w niedalekiej przyszłości wytwarzać będą lasery X-FEL [6].

Już obecnie, stosując słabsze źródła rentgenowskich impulsów femtosekundowych jako sondy udaje się śledzić dynamikę ultraszybkich procesów wzbudzanych np. przez lasery konwencjonalne pracujące w zakresie widzialnym lub w podczerwieni. Pierwsze badania dyfrakcji z obszaru zniszczeń obrazujące dynamikę oddziaływania silnych wiązek z materiałami wykonano przy użyciu specjalnie

skonstruowanych urządzeń synchrotronowych (m. in. na synchrotronie i akceleratorze liniowym uniwersytetu Stanforda, SLAC, SPPS) wytwarzających ultrakrótkie impulsy rentgenowskie [7]. W ten sposób, monitorując refleksy braggowskie od sieci próbki, udało się np. wykazać, że podczas gwałtownego grzania próbki InSb wiązką lasera impulsowego powstaje gęsta plazma złożona z elektronów i dziur, co prowadzi do zniszczenia uporządkowania sieci krystalicznej próbki w czasie krótszym niż czas osiągnięcia równowagi termicznej. Eksperyment ten potwierdził również, że w początkowej fazie nagrzewania laserowego dynamika atomów sieci jest „bezwładnościowa”, tzn. atomy uwolnione z sieci krystalicznej na skutek oddziaływania z wiązką światła poruszają się bezwładnie z prędkościami właściwymi dla rozkładu temperaturowego o temperaturze pokojowej [8,9].

W badaniach dynamiki układów można też wykorzystywać inne własności promieniowania krótkofalowego z laserów X-FEL, jak jego koherencję przestrzenną, ułatwiającą analizę zmian frontu falowego i koherentnych rozprożeń na przypowierzchniowych niejednorodnościach i fluktuacjach z rozdzielczością rzędu nanometrów. Za pomocą mikroskopii interferencyjnej wykorzystującej wspomniane wyżej synchrotronowe źródło rentgenowskich impulsów femtosekundowych wykazano na przykład, że dynamika wzrostu naprężeń przy naświetlaniu materiałów ciągiem krótkich silnych impulsów lasera optycznego w skali pikosekundowej zależy od czasu repetycji. Gdy czas między impulsami wzrasta powyżej pewnej wartości, rzędu 20-30 ps, następuje wyraźne zmniejszenie naprężeń. Powtarzanie impulsów z krótszym czasem repetycji powoduje modulację naprężeń w materiale, a nawet prowadzi do ich wzrostu [10]. Tą metodą można również śledzić ultraszybkie przejścia elektronowe i fazowe w ciałach stałych (zob. np. pracę dotyczącą nanokryształów VO₂, M. Rini *et al.* [11]).

Jednak strumienie fotonów emitowane w femtosekundowych impulsach za pomocą synchrotronu są niebyt intensywne. Przykładowo, oddana niedawno do użytku w Advanced Light Source, USA *femtosekundowa linia undulatorowa 6.0* dostarcza w impulsach o czasie trwania ok. 150-250 fs i repetycji 20 kHz około 10¹⁵ fotonów/sekundę/0.1% szerokości pasmowej. Strumienie fotonów w impulsach femtosekundowych uzyskiwane ze źródeł zbudowanych na magnesach zakrzywiających są rzędu 10⁹ fotonów/sek/0.1% szer. pas, i są porównywalne do strumienia uzyskiwanego ze źródeł plazmowych. Przełomem będzie tu laser rentgenowski X-FEL, którego budowa rozpocznie się w styczniu 2007 r. w DESY (Hamburg) wykorzystując doświadczenie zebrane podczas konstrukcji i eksploatacji lasera FLASH.

3. Stacja badawcza FELIS

Aby zbadać oddziaływanie silnych femtosekundowych impulsów promieniowania XUV z materia, a w szczególności własności optyczne i procesy modyfikacji i niszczenia materiałów, wykorzystano promieniowanie lasera FLASH, pierwszego w świecie źródła emitującego impulsy

promieniowania o takiej charakterystyce zarówno z ultra-wysoką mocą szczytową, jak i z wysoką mocą średnią.

Do wykonania pomiarów posłużyła specjalnie skonstruowana stacja doświadczalna FELIS (Free Electron Laser – Interaction with Solids). Zadania jej zaprojektowania i budowy podjął się zespół polskich naukowców i inżynierów kierowany przez dra Jacka Krzywińskiego. Całość prac przeprowadzono w ramach trwającej nieprzerwanie od roku 1999 współpracy z Peak Brightness Collaboration Group przy laserze TTF FEL w Hamburgu. Prototyp stacji, FELIS I został ukończony i sprawdzony w r. 2001, umożliwiając przeprowadzanie eksperymentów z nowym źródłem jeszcze w fazie testów przedeksplatacyjnych. Opis pierwszej, prototypowej wersji stacji FELIS znaleźć można w poświęconym jej artykule [12]. Na Rysunku 1A zamieszczono szkic bryły stacji z zaznaczonymi najważniejszymi elementami zewnętrznego oprzyrządowania. Na Rysunku 1B przedstawiono zdjęcie wnętrza komory próżniowej z centralnie umieszczonym uchwytem próbek i widocznymi z prawej strony obudową detektorów promieniowania oraz, nieco z tyłu, stożkową strukturą członu przyspieszającego detektora TOF.

Komora próżniowa stacji musiała spełnić restrykcyjne wymagania techniczne narzucone przez konstrukcję lasera FLASH. Zaprojektowano ją w taki sposób, by umieszczone we wnętrzu urządzenia były odporne na ekstremalnie silne impulsy promieniowania XUV. Do rejestracji odbicia i transmisji promieniowania przez próbki opracowano i zbudowano specjalne detektory pozwalające mierzyć duże natężenia promieniowania XUV unikając nasycenia i, w skrajnym przypadku, uszkodzenia. Skonstruowano od podstaw spektrometr czasu przelotu (TOF – Time of Flight) dostosowując go do detekcji cząstek naładowanych, zarówno elektronów jak i jonów. Umieszczono go w komorze eksperymentalnej wraz ze spektrometrem masowym cząstek neutralnych. Urządzenia te służyły do rejestracji i analizy rozkładów ładunków, masy i energii cząstek wyrzuconych z powierzchni próbki na skutek oddziaływania z impulsami lasera.

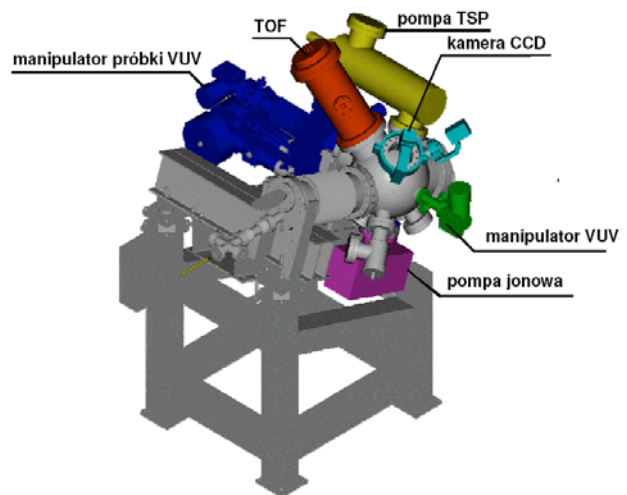
Konstrukcja stacji doświadczalnej zawiera szereg dodatkowych portów (zaślepek i okienek), umożliwiających dołączanie do niej w razie potrzeby urządzeń zewnętrznych. Przez jeden z portów doprowadzono do wnętrza komory wiązkę emitowaną z dodatkowego próbkującego lasera optycznego, zamontowano także mikroskop optyczny pozwalający obserwować obraz powierzchni próbki oświetlonej tym zewnętrznym impulsem próbkującym w eksperymentach typu *pump and probe* w układzie „dwukolorowym”, w którym impuls próbkujący i pompujący mają różne długości fali. Inny układ, w którego skład wchodziło zwierciadło opóźniające, służył do wykonywania eksperymentów *pump and probe* w układzie „jednokolorowym”. W tym przypadku oba impulsy (wzbudzający i próbkujący) pochodzą z tego samego źródła. Impuls próbkujący jest odbitym i opóźnionym impulsem wzbudzającym. W ten sposób można było badać dynamikę transmisji optycznej cienkich folii z rozdzielczością rzędu 10 ps).

Specjalnie zaprojektowany uchwyt próbek pozwalał nie tylko na precyzyjne pozycjonowanie badanych materiałów w

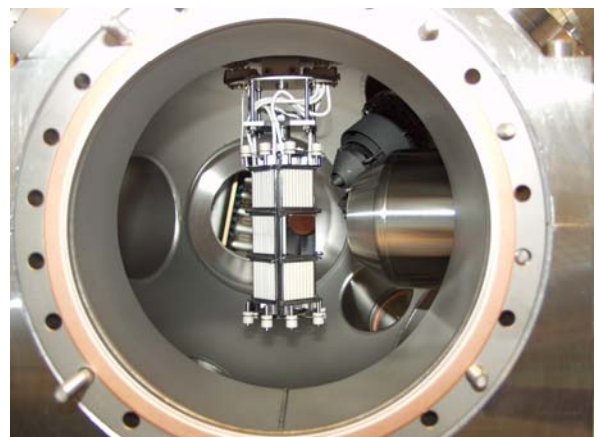
stosunku do wiązki, lecz również umożliwiał wygrzewanie w temperaturze do 1000 K i naporowywanie cienkich warstw na ich powierzchnię. Uchwyt znacznie redukował drgania próbek, co poprawiało rozdzielczość rejestrowanych obrazów mikroskopowych.

4. Wybrane rezultaty badań oddziaływania impulsów lasera FLASH z materią stałą

Typowy obraz powierzchni próbki po napromieniowaniu przedstawiono na Rys. 2A. Obok, na Rys. 2B, zamieszczono przykładowy obraz krateru ablacyjnego wytworzonego w warstwie złota o grubości 100 nm nałożonej na płytce szafiru i napromieniowanej pojedynczym strzałem promieniowania lasera FLASH o długości fali 32 nm i fluencji rzędu 1 J/cm². Obraz uzyskano za pomocą mikroskopu sił atomowych AFM. Wokół granic krateru, których nieregularność odzwierciedla „naturalny” rozkład natężenia wiązki lasera, w tym przypadku nie ograniczonej jakąkolwiek aperturą, zwraca uwagę obecność „obwałowania” (jaśniejsza obwódka).

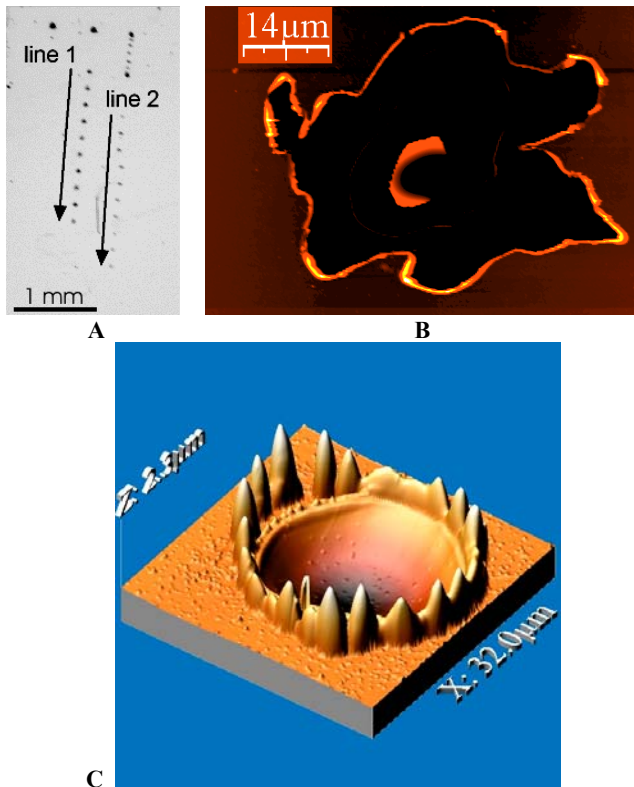


A



B

Rys. 1. (A) Szkic stacji doświadczalnej Felis I. (B) Widok wnętrza komory pomiarowej z centralnie położonym uchwytem próbek i urządzeniami detekcyjnymi.



Rys. 2. (A): Przykład powierzchni próbki z wyróżnionymi dwoma rzędami kraterów powstałych na skutek napromieniowania pojedynczymi impulsami lasera XUV FEL (mikroskop z kontrastem Nomarskiego).

(B): krater ablacyjny w warstwie powstały w wyniku pojedynczego strzału w warstwie złota o grubości 100 nm nałożonej na monokryształ szafiru (mikroskop AFM), długość fali promieniowania 32 nm, fluencja ok. 1 J/cm^2 .

(C) przykład krateru ablacyjnego (obraz AFM) na powierzchni krzemu. Napromieniowanie pojedynczym impulsem lasera FLASH, dl fali 32 nm, fluencja 1.6 J/cm^2 .

Instrumenty umieszczone wewnątrz komory stacji FELIS pozwalały naświetlać próbki i badać je *in-situ*. Spośród wielu istotnych rezultatów przytoczmy tu przykładowo te dotyczące oddziaływania materiałów z impulsami promieniowania o długościach fali 32 nm ($h\nu = 38.7 \text{ eV}$) oraz 13.5 nm ($h\nu = 91.8 \text{ eV}$) emitowanego w impulsach o czasie trwania rzędu 30 fs. Badanie współczynników odbicia i transmisji cienkich folii, jak Si i Al oraz współczynników odbicia próbek objętościowych (grubych w porównaniu z głębokością absorpcji), jak Si i SiO_2 pokazały, że nawet dla impulsów o największym osiągalnym w trakcie doświadczenia natężeniu dochodzącym do 10^{14} W/cm^2 , przy których gęstość zaabsorbowanej energii osiągała 100 eV/atom, pozostają one prawie niezmienione i nie różnią się znacząco od współczynników zmierzonych dla niskich natężeń impulsów [13].

Również współczynnik odbicia wielowarstwowego zwierciadła Si/C zmierzony w tych samych warunkach

doświadczalnych oraz grubość i struktura warstw zwierciadła nie ulegają zmianie [14]. Oznacza to, że podczas trwania impulsu, czyli przez co najmniej 30 fs, stałe optyczne badanych materiałów pozostają niezmienione i niezależne od intensywności. Modyfikacje własności materiałów i procesy zniszczeń następują po czasie dużo dłuższym niż błysk wzbudającego trzydziestofemtosekundowego impulsu.

Aby więc przewidzieć własności optyczne materiałów w trakcie działania nawet bardzo silnego impulsu, takie jak głębokość absorpcji promieniowania, czy profil gęstości zaabsorbowanej energii, wystarczy znajomość struktury i zespolonego współczynnika załamania dla danego materiału wyznaczonego za pomocą tradycyjnych źródeł promieniowania o niewielkim natężeniu. Ma to podstawowe znaczenie nie tylko dla uściślenia modeli interakcji silnych impulsów krótkofalowych z materią, lecz przede wszystkim dla konstruowania specjalnej optyki kształtującej silne wiązki laserów FEL. Niestety, na tej podstawie nie można przewidzieć dynamiki procesów poradiacyjnych w materii stałej, ewoluujących po wyłączeniu impulsu, które w konsekwencji prowadzą do modyfikacji własności i do zniszczeń.

Wykorzystanie dodatkowego zewnętrznego lasera i techniki *pump and probe* pozwoliło zaobserwować dynamikę zmian właściwości optycznych w zakresie widzialnym powierzchni ciał stałych (Si, GaAs) wzbudzonych przez promieniowanie lasera FLASH. Do pomiarów wykorzystano mikroskop optyczny z impulsem próbkującym opóźnionym w stosunku do impulsu wzbudającego w zakresie czasu od 0 do 18 ns. Rozdzielczość czasowa ograniczona była długością impulsu próbkującego, który w tym przypadku wynosił 10 ps. Zarejestrowane zmiany różniły się znacząco od dynamiki materiałów obserwowanej po wzbudzeniu za pomocą femtosekundowych impulsów z zakresu optycznego. Różnice te mogą wynikać z innej głębokości penetracji energii promieniowania XUV i mniejszego znaczenia nieliniowości w przypadku tego promieniowania w procesie absorpcji.

Ewolucję czasową transmisji promieniowania przez cienkie folie badano stosując „jednokolorową” modyfikację techniki *pump and probe*. zilustrowano to na Rys. 3, gdzie pod schematem wyjaśniającym zasadę tej techniki pokazano dwa obrazy z kamery CCD zarejestrowane przy różnych opóźnieniach impulsu próbkującego w stosunku do impulsu wzbudającego. W ten sposób udało się wykazać, że nawet w kilka pikosekund po naświetleniu silnym impulsem lasera FLASH współczynniki transmisji przez folie praktycznie się nie zmieniają.

Do badania *ex-situ* materiałów poddanych działaniu impulsów lasera zastosowano wiele różnych metod. Zmiany morfologiczne na powierzchni próbek, w tym detale kraterów poablacyjnych obrazowano metodami mikroskopii optycznej, wykorzystując szczególnie mikroskopię kontrastową Nomarskiego. Stosowano również mikroskopię sił atomowych (AFM) a także, sporadycznie, skaningową mikroskopię elektronową. Modyfikacje struktury materiałów badano przede wszystkim metodami wykorzystującymi mikrowiązki: spektroskopię Ramana oraz dyfrakcyjne metody rentgenowskie. Małe rozmiary wiązki pomiarowej są

tu szczególnie istotne w świetle faktu, iż typowy rozmiar miejsca naświetlonego na powierzchni próbki jest rzędu kilkudziesięciu mikronów, a nie jest on zwykle fazowo jednorodny.

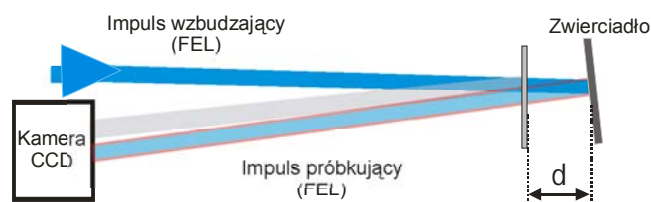
Jeden z pierwszych eksperymentów wykonanych za pomocą synchrotronowej wiązki promieniowania rentgenowskiego miał na celu zbadanie modyfikacji strukturalnych wokół kraterów ablacyjnych na próbkach monokrystalicznego krzemu oraz w cienkich warstwach złota nałożonego na jego powierzchni [15]. Na Rys. 4. zamieszczono rozkłady natężenia refleksu nieco „odstrojonego” od dokładnego warunku Bragga zmapowane wokół siedmiu kraterów na powierzchni krzemu (Rys. 4AB) i wokół trzech kraterów w cienkiej warstwie złota (Rys. 4CD). Dzięki tym badaniom określono, że maksymalny zasięg mierzalnych naprężeń w materiałach poddanych naświetleniu nie przekraczał 150-170 μm . Na tej podstawie wyznaczono minimalną odległość między kolejnymi punktami naświetlenia na powierzchni próbek dla wszystkich następujących eksperymentów na laserze FLASH. Dzięki temu można uniknąć sytuacji, w której kolejny impuls trafia na obszar już zmodyfikowany w poprzedzających aktach naświetlania.

W innym eksperymencie z zastosowaniem rentgenowskiej wiązki monochromatycznej o rozmiarach 250 nm przeprowadzonym na stacji pomiarowej ID-13 synchrotronu ESRF w Grenoble badano strukturę krystaliczną materiałów w okolicy kraterów ablacyjnych. Wykazano, że w próbkach Si oraz w warstwach złota na szafirze faza polikrystaliczna występuje jedynie na brzegach krateru w wąskim obwałowaniu, o grubości rzędu 300 nm i, w przypadku dużych fluencji, także w samym środku krateru. Występowanie fazy polikrystalicznej na samej krawędzi wokół miejsca gwałtownych procesów ablacyjnych, jakim jest krater sugeruje, iż stanowi ona przypuszczalnie pozostałości po natywnej fazie materiału sprzed ablacji i nie jest raczej wynikiem rekrytalizacji materiału całkowicie stopionego w wyniku absorpcji energii impulsu [16].

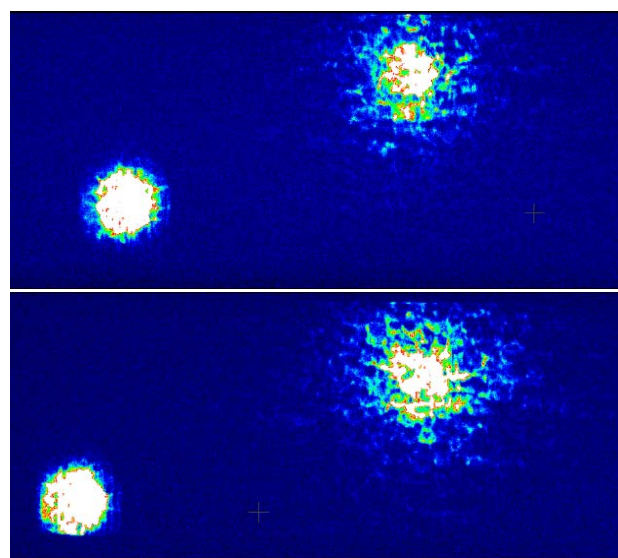
Połączenie rezultatów pomiarów *in-situ* w komorze stacji FELIS z mikroskopowymi badaniami *ex-situ* powierzchni próbek po naświetleniu pozwoliło określić progi zniszczeń powierzchni różnych materiałów nieorganicznych napromieniowanych impulsami lasera FLASH o długości fali w zakresie 13.5 – 100 nm. Odpowiadają one gęstości energii zaabsorbowanej koniecznej do zajścia procesu topnienia termicznego. Dla fluencji większych niż próg zniszczeń, głębokość i morfologia kraterów wskazują, że powstały one w wyniku wyrzucenia częściowo stopionego, fazowo niejednorodnego materiału. Takie zachowanie w przypadku laserów optycznych znane jest tylko w przypadku promieniowania ciągłego bądź impulsów o długim czasie trwania, rzędu nanosekund. W szczególności oszacowano też progi zniszczeń różnych materiałów stosowanych w optyce pracującej w zakresie XUV [17,18]. Uzyskane rezultaty pozwolą optymalnie dobrać materiały do konstrukcji nowych linii optycznych lasera FLASH [19]. Mają też istotne znaczenie dla konstrukcji powstających nowych silnych źródeł XUV-FEL i X-FEL.

Uzyskane dane doświadczalne służą, dzięki porównaniu z symulacjami numerycznymi, formułowaniu i weryfikacji

teoretycznych modeli interakcji silnych wiązek krótkofalowych z materiałem. Pozwoliło to m.in. określić stosowność dwóch modeli teoretycznych badanych zjawisk: tzw. modelu dwutemperaturowego oraz termomechanicznego modelu hydrodynamicznego wykorzystującego metodę różnic skończonych Lagrange'a [20,21].



A



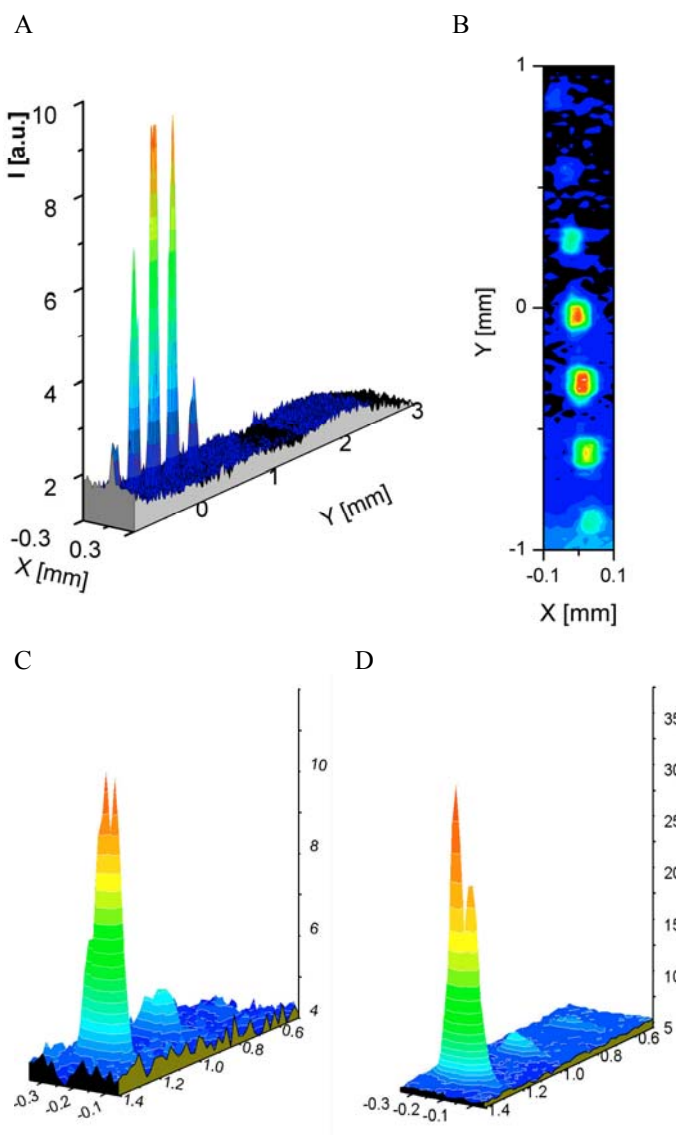
B

Rys. 3. (A) schemat jednocolorowego eksperymentu *pump and probe*. odległość d między zwierciadłem a próbką – cienką folią badanego materiału decyduje o opóźnieniu powrotnego impulsu próbkującego.

(B) obrazy z kamery CCD wykonane podczas eksperymentu *single color pump and probe* przy użyciu promieniowania o długości fali 13.5 nm emitowanego z lasera FLASH. Rozmyte plamki z prawej strony to odbicie promienia padającego na cienką płytkę azotku krzemu. Plamki z lewej strony stanowią obraz impulsów próbkujących powstały po ich odbiciu od zwierciadła znajdującego się za badaną folią i położonego nieco skośnie w stosunku do płytki. W rzeczywistości obydwie plamki niemal dokładnie pokrywają się na powierzchni próbki; kamera rejestruje je rozdzielone ze względu na rozbieżność kierunków promieni odbitego od próbki oraz przechodzącego. Na górnym rysunku impuls próbkujący był opóźniony o 10 fs, zaś na dolnym o około 2 ps w stosunku do impulsu wzbudzającego. Względne natężenie plamki lewej i prawej na obu obrazach nie różni się znacząco.

5. Podsumowanie

Oddziaływanie silnych impulsów wytwarzanych przez krótkofalowe lasery FEL z materią stałą jest nowym zagadnieniem, którego zbadanie w decydujący sposób przyczyni się do rozwoju wielu różnych dziedzin nauki. Nada również impuls opracowaniu nowych metod pomiarowych i nieznanych wcześniej rozwiązań konstrukcyjnych. Charakterystyka promieniowania laserów FEL w zakresie XUV i rentgenowskim pozwoli inicjować procesy i przeprowadzać eksperymenty z rozdzielczością czasową rzędu femtosekund. Oznacza to np. możliwość badania dynamiki ultraszybkich reakcji chemicznych, procesów wzbudzenia i relaksacji sieci krystalicznych, czy nierównowagowego transportu w ciałach stałych.



Rys. 4. Mapy rozkładu natężeń w pobliżu refleksu braggowskiego Si(400) wokół siedmiu miejsc na powierzchni monokryształu Si(001) poddanych działaniu impulsów lasera FEL pracującego przy długości fali 89 nm (A,B) i wokół trzech miejsc na powierzchni warstwy AuAl nałożonej na podłoże Si(001) (C- dla kąta $\theta < \theta_B$, D-dla kąta $\theta > \theta_B$). Odległość między środkami napromieniowanych obszarów wynosi 300 μm .

Dla biologii molekularnej i dyscyplin pokrewnych otwiera możliwość określania struktury wielkich cząsteczek biologicznie aktywnych, np. białek, bez konieczności krystalizacji materiału badawczego. W chwili obecnej wyznaczanie struktury białka metodami rentgenowskimi za pomocą promieniowania synchrotronowego odbywa się w toku żmudnego procesu badawczego, trwającego z reguły wiele miesięcy lub nawet lat. Zastosowanie lasera X-FEL pozwoli nie tylko uprościć metody doświadczalne, zmniejszyć ryzyko degradacji próbek, lecz skróci czas badań o ponad 2 rzędy wielkości – do dni i tygodni.

Zanim to jednak nastąpi, konieczne będzie rozwiązanie szeregu problemów i dokładniejsze zrozumienie zjawisk leżących u podstaw interakcji krótkofalowego promieniowania FEL z materią. Z zagadnień, które już dzisiaj jasno jawią się jako priorytetowe kierunki prac w tej dziedzinie wymienić należy szczegółowe zbadanie dynamiki zniszczeń materiałów, roli, jaką odgrywają tu stan WDM i eksplozja kulombowska, zagadnienia odporności materiałów i urządzeń optycznych na działanie silnych wiązek promieniowania, czy zbadanie procesów kumulacji defektów materiałów optycznych (procesy starzenia się). Nielatwym zadaniem jest także konstrukcja odpowiednio szybkich detektorów odpornych na zniszczenia radiacyjne, oraz szybkiej, femtosekundowej optoelektroniki do detekcji i sterowania, np. opóźnieniem pomiędzy impulsami w eksperymentach typu *pump and probe*.

W krótkim czasie wzrośnie jeszcze sprawność laserów FEL pozwalając osiągnąć gęstości mocy promieniowania rzędu 10^{16} W/cm² i powyżej, przy których spodziewane jest występowanie silnych efektów nieliniowych w absorpcji i transmisji ciał stałych ujawniających się już w czasie trwania impulsu wzbudzającego.

Zanim więc laser X-FEL wywiąże się z pokładanych w nim nadziei i, pełniąc rolę swoistego teleskopu Hubble'a mikroświata, pozwoli badać strukturę molekuł i dynamikę ultraszybkich procesów w materii skondensowanej, czeka nas kilka lat wyteźonej, lecz fascynującej pracy badawczej i konstrukcyjnej.

Literatura:

- [1] A. Kisiel, "Synchrotron as a tool: applications of synchrotron radiation in spectroscopy of the solid-state" (in Polish), *Synchrotr. Radiat. Nat. Sci.* **5** (3) (2006) 145-167.
- [2] R. Sobierajski, K. Ławniczak-Jabłońska, "New light for science: European X-ray Free Electron Laser" (in Polish), *Synchrotr. Radiat. Nat. Sci.* **5** (3) (2006) 176-183.
- [3] P. Emma, "Accelerator physics challenges of x-ray FEL SASE sources"; Invited talk presented at Eighth European Particle Accelerator Conference, 6/3/2002—6/7/2002, Paris, France, SLAC-PUB-9243, May 2002.
- [4] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert, J. Hajdu, "Potential for biomolecular imaging with femtosecond X-ray pulses", *Nature* **406** (2000) 752-757.
- [5] J. Krzywinski, R. Sobierajski, M. Jurek, R. Nietubyc, J.B. Pelka, L. Juha, M. Bittner, V. Létal, V. Vorlíček, A. Andrejczuk, J. Feldhaus, E.L. Saldin, E.A. Schneidmiller, R. Treusch, M.V. Yurkov, "Conductors, semiconductors

- and insulators irradiated with short-wavelength free-electron laser", *J. Appl. Phys.* **101** (2007), in press.
- [6] A.M. Lindenberg, I. Kang, S.L. Johnson, T. Missalla, P.A. Heimann, Z. Chang, J. Larsson, P.H. Bucksbaum, H.C. Kapteyn, H.A. Padmore, R.W. Lee, J.S. Wark, R.W. Falcone, "Time-Resolved X-Ray Diffraction from Coherent Phonons during a Laser-Induced Phase Transition", *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 111-114.
- [7] R.W. Schoenlein, S. Chattopadhyay, H.H.W. Chong, T.E. Glover, P.A. Heimann, C.V. Shank, A.A. Zholents, M.S. Zolotarev, "Generation of Femtosecond Pulses of Synchrotron Radiation," *Science* **287** (2000) 2237-2240.
- [8] A.M. Lindenberg, J. Larsson, K. Sokolowski-Tinten, K.J. Gaffney, C. Blome, O. Synnergren, J. Sheppard, C. Caleman, A.G. MacPhee, D. Weinstein, D.P. Lowney, T.K. Allison, T. Matthews, R.W. Falcone, A.L. Cavalieri, D.M. Fritz, S.H. Lee, P.H. Bucksbaum, D.A. Reis, J. Rudati, P.H. Fuoss, C.C. Kao, D.P. Siddons, R. Pahl, J. Als-Nielsen, S. Duesterer, R. Ischebeck, H. Schlarb, H. Schulte-Schrepping, Th. Tschentscher, J. Schneider, D. von der Linde, O. Hignette, F. Sette, H.N. Chapman, R.W. Lee, T.N. Hansen, S. Techert, J.S. Wark, M. Bergh, G. Huldt, D. van der Spoel, N. Timneanu, J. Hajdu, R.A. Akre, E. Bong, P. Krejčík, J. Arthur, S. Brennan, K. Luening, J.B. Hastings, "Atomic-Scale Visualization of Inertial Dynamics", *Science* **308** (2005) 392-395.
- [9] A.L. Cavalieri, D.M. Fritz, S.H. Lee, P.H. Bucksbaum, D. A. Reis, J. Rudati, D.M. Mills, P.H. Fuoss, G.B. Stephenson, C.C. Kao, D.P. Siddons, D.P. Lowney, A.G. MacPhee, D. Weinstein, R.W. Falcone, R. Pahl, J. Als-Nielsen, C. Blome, S. Duesterer, R. Ischebeck, H. Schlarb, H. Schulte-Schrepping, Th. Tschentscher, J. Schneider, O. Hignette, F. Sette, K. Sokolowski-Tinten, H.N. Chapman, R.W. Lee, T.N. Hansen, O. Synnergren, J. Larsson, S. Techert, J. Sheppard, J.S. Wark, M. Bergh, C. Caleman, G. Huldt, D. van der Spoel, N. Timneanu, J. Hajdu, R.A. Akre, E. Bong, P. Emma, P. Krejčík, J. Arthur, S. Brennan, K.J. Gaffney, A.M. Lindenberg, K. Luening, J.B. Hastings "Clocking femtosecond x-rays", *Phys. Rev. Lett.* **94** (2005) 114801.
- [10] A.M. Lindenberg, I. Kang, S.L. Johnson, R.W. Falcone, P.A. Heimann, Z. Chang, R.W. Lee, J.S. Wark, "Coherent control of phonons probed by time-resolved x-ray diffraction", *Optics Lett.* **27** (2002) 869-871.
- [11] M. Rini, A. Cavalleri, R.W. Schoenlein, R. Lopez, L.C. Feldman, R.F. Haglund, L.A. Boatner, T.E. Haynes, "Photoinduced phase transition in VO₂ nanocrystals: ultrafast control of surface-plasmon resonance", *Optics Lett.* **30** (2005) 558-560.
- [12] R. Sobierajski, J. Krzywinski, A. Andrejczuk, U. Hahn, R. Treusch, M. Jurek, D. Klinger, R. Nietubyć, J.B. Pelka, H. Reniewicz, M. Sikora, W. Sobala, "Experimental station to study the interaction of intense femtosecond vacuum ultraviolet pulses with matter at TTF1 free electron laser", *Rev. Sci. Instrum.* **76** (2005) 013909.
- [13] To be published; wstępne wyniki ogłoszono w dwu komunikatach podczas UV-FEL User Workshop, DESY, 26-27 I 2006: 1. R. Sobierajski, "High intensity VUV-FEL radiation interaction with solids: transmission, reflection & absorption", oraz 2. K. Sokolowski-Tinten, "Results of experiments at the VUV-FEL", invited lecture.
- [14] S.P. Hau-Riege, *et al.*, "Sub-nanometer scale measurements of the interaction of ultrafast soft x-ray free-electron-laser pulses with matter", submitted to: *Phys. Rev. Lett.* (2006).
- [15] J.B. Pelka, A. Andrejczuk, H. Reniewicz, N. Schell, J. Krzywinski, R. Sobierajski, A. Wawro, Z.R. Zytewicz, D. Klinger, L. Juha, "Structure modifications in silicon irradiated by ultra-short pulses of XUV free electron laser", *J. Alloys Compds* **382** (2004) 264-270.
- [16] J.B. Pelka, R. Sobierajski, W. Paszkowicz, praca w przygotowaniu.
- [17] B. Steeg, L. Juha, J. Feldhaus, S. Jacobi, R. Sobierajski, C. Michaelson, A. Andrejczuk, J. Krzywinski, "Total reflection amorphous carbon mirrors for vacuum ultraviolet free electron lasers", *Appl. Phys. Lett.* **84** (2004) 657-659.
- [18] N. Stojanovic, U. Zastra, R. Sobierajski, F. Perner, R. Nietubyć, M. Jurek, J. Krzywinski, L. Juha, J. Kuba, Th. Tschentscher, S. Toleikis, S. Duesterer, H. Redlin, D. Klinger, J. Pelka, J. Cihelka, A. Velyhan, S. Koptyaev, V. Hajkova, J. Chalupský, E. Förster, D. von der Linde, K. Sokolowski-Tinten, "Ablation of solids using a femtosecond XUV free electron laser", *Appl. Phys. Lett.* **89** (2006) 241909 1-3.
- [19] *TESLA Technical Design Report Part II*, Ed. R. Brinkmann, K. Floettmann, J. Rossbach, P. Schmueser, N. Walker, H. Weise, (Deutsches Elektronen Synchrotron DESY 2001), ISBN 3-935702-06-X (2001).
- [20] L. Juha, M. Bittner, D. Chvostova, V. Letal, J. Krasa, Z. Otcenasek, M. Kozlova, J. Polan, A.R. Prag, B. Rus, M. Stupka, J. Krzywinski, A. Andrejczuk, J.B. Pelka, R. Sobierajski, L. Ryc, J. Feldhaus, F.P. Boody, M.E. Grisham, G.O. Vaschenko, C.S. Menoni, J.J. Rocca; "XUV-laser induced ablation of PMMA with nano-, pico, and femtosecond pulses", *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **144-147** (2005) 929-932.
- [21] R. Sobierajski, "Oddziaływanie femtosekundowych impulsów promieniowania lasera na swobodnych elektronach z powierzchniami ciał stałych", praca doktorska (Politechnika Warszawska, Warszawa 2005).