

Il microfascio esterno a scansione del laboratorio LABEC di Firenze

1 *Utilità di un microfascio*

Nel *set-up* dell'acceleratore KN3000, il diametro minimo del fascio ottenibile per solo focheggiamento era finora dell'ordine del millimetro e poteva essere ridotto per collimazione fino a qualche centinaio di micron, mantenendo un'intensità di corrente fino alla decina di nA, più che sufficiente per la gran parte delle misure *PIXE* [¹]. C'è tuttavia una vasta area di applicazioni per la quale è estremamente utile disporre di un fascio interamente confinato in qualche decina di micron: tutti i casi in cui è importante avere una informazione di composizione che possa essere attribuita selettivamente a una zona molto piccola del campione, e non rappresenti la media su un'area più ampia.

Un primo esempio, in ambito petrografico, è dato dalle misure su cristalli di dimensioni di 2÷300 μm o meno inclusi in una roccia. Lo studio della distribuzione spaziale degli elementi in traccia dal nucleo al bordo (effetti di "zonatura") è spesso un parametro chiave per ricavare informazioni sul modo in cui il cristallo si è formato dalla fase liquida durante l'evoluzione del magma [²].

Anche le analisi di composizione in microinclusioni all'interno di rocce rappresentano applicazioni importanti nell'ambito delle prospezioni minerarie per l'individuazione di potenziali materiali sfruttabili per l'estrazione di metalli preziosi.

Un altro settore applicativo in cui può essere importante un fascio di piccole dimensioni è l'archeometria. Un primo esempio in questo ambito è dato dallo studio degli strati pittorici, che hanno spessori tipicamente dell'ordine del centinaio di μm [³]. In sezioni trasversali (che si possono ottenere effettuando microprelievi, inglobandoli in resina e poi tagliandoli perpendicolarmente), si possono studiare eventuali mescolamenti (o viceversa mettere in evidenza una netta separazione) dei materiali fra gli strati sovrapposti. Questo può fornire informazioni sulla tecnica di stesura usata per ottenere l'effetto cromatico desiderato. Per avere

un'informazione utile su questi effetti sulle dimensioni citate dell'ordine dei 100 μm complessivi, è chiaro che occorre avere fasci di dimensione sensibilmente minore.

Ancora un'altra applicazione è data dallo studio delle tecniche di saldatura usate nella gioielleria antica: misure con microfascio hanno ad esempio rivelato che, per effettuare saldature in punti vicini, sono state usate leghe diverse, con punti di fusione differenti, per evitare di dissaldare le giunture precedenti all'atto della saldatura successiva [4]. In questo caso una buona risoluzione spaziale, migliore di 50 μm , è necessaria per mettere in evidenza con sicurezza le variazioni di composizione della lega, presenti anche su distanze dell'ordine della frazione di millimetro.

Un microfascio rappresenta infine uno strumento ideale per la micro-fabbricazione e la modifica controllata delle proprietà dei materiali e del diamante in particolare. Esempi dell'utilizzo dell'impiantazione ionica per l'ingegnerizzazione del diamante includono l'alterazione controllata dell'indice di rifrazione del materiale per la realizzazione di dispositivi ottici e la conversione da diamante a grafite, che è la forma strutturale energeticamente più favorevole per il carbonio ed esibisce proprietà fisiche complementari a quella del cristallo. Da alcuni anni, il laboratorio LABEC ha avviato, in collaborazione con l'Università di Torino, un'attività di ricerca sulla micro-fabbricazione e micro-funzionalizzazione del diamante per mezzo di fasci ionici MeV focalizzati.

Per ottenere fasci di dimensioni entro la decina di micron, sono stati sviluppati sistemi di focheggiamento elettrico e magnetico; negli ultimi 20 anni, lo sviluppo di sistemi di alimentazione di altissima stabilità (a livello di 1 ppm) e la disponibilità di tecniche di lavorazione meccanica di grande accuratezza hanno permesso lo sviluppo di sistemi capaci di raggiungere *spot* del fascio sul bersaglio dell'ordine delle centinaia di nm, e nell'ultimo anno sono state raggiunti anche fasci di dimensioni dell'ordine delle decine di nm.

2 Il microfascio esterno a scansione del laboratorio LABEC di Firenze

Descriviamo qui la linea di microfascio esterno a scansione, il sistema di monitoraggio della carica e il *set-up* di rivelazione-acquisizione, ossia tutte le parti di cui è composto lo “strumento” microfascio. Per una descrizione più approfondita del microfascio e della linea si può vedere [5]. Il fascio, generato nella sorgente, viene accelerato a energie dell'ordine dei MeV; il fascio poi, guidato e formato dagli elementi attivi lungo la linea, viene deviato dallo Switcher Magnet (SW) sulla linea a -30° , quella del canale di microfascio.

2.1 Il trasporto lungo la linea

Facendo riferimento alla figura 1, circa un metro a valle dello SW è installata una coppia di magneti deflettori ST1 (*steering magnets*) per allineare finemente il fascio lungo l'asse del canale. L'elemento successivo è la fenditura regolabile a quattro settori indipendenti OS (*object slits*); tale fenditura è collocata nel fuoco del precedente sistema di trasporto; la fenditura regolabile OS crea l'oggetto per la lente fortemente foceggiante del microfascio, costituita da un doppietto di quadrupoli magnetici, posta 6 metri a valle.

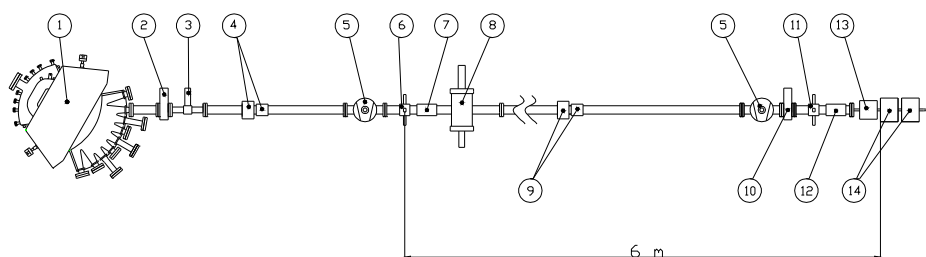


Figura 1 Schema della linea di microfascio: 1 – *switcher magnet* SW; 2 – *gate valve* GV1; 3 – valvola veloce FV; 4 – deflettori del fascio orizzontale e verticale ST1; 5 – stazione di pompaggio UHV; 6 – fenditura oggetto OS; 7 – *beam profile monitor* BPM1; 8 – quarzo e *Faraday cup* QFC; 9 – deflettori del fascio orizzontale e verticale ST2; 10 – *gate valve* GV2; 11 – fenditura di collimazione del fascio CS; 12 – *beam profile monitor* BPM2; 13 – bobine di deflessione SC; 14 – QD lente di foceggiamento forte costituita dal doppietto di quadrupoli magnetici.

Come in un sistema ottico, porre l'oggetto di una lente fortemente convergente a una distanza molto più grande della distanza focale fa sì che l'immagine risulti molto più piccola dell'oggetto. Questo accade anche col fascio di particelle, le cui dimensioni sul bersaglio finale, grazie anche alla piccola apertura della OS, possono essere tipicamente ridotte sino a qualche micron,

mantenendo il bersaglio in vuoto, oppure a circa dieci micron quando il bersaglio è in atmosfera di elio¹.

A valle delle OS si trova una stazione di diagnostica del fascio (elementi 7 e 8 nella figura 1).

Le bobine di scansione SC e il doppietto di quadrupole magnetici a foccheggiamento forte QD sono a ~ 6 m dalle OS; una seconda coppia di deflettori del fascio ST2 è posta subito prima dei quadrupoli per l'allineamento fine del fascio sull'asse magnetico dei quadrupoli. Subito prima di entrare nella lente di foccheggiamento forte costituita dal doppietto di quadrupoli QD è posta una fenditura di collimazione CS, per limitare gli effetti delle aberrazioni della lente. A valle del doppietto QD, il fascio è focalizzato sul bersaglio in esame, in atmosfera, circa 2 mm a valle di una finestra di uscita.

2.2 Il sistema di scansione

Col nostro sistema si possono acquisire mappe elementali usando sia la deflessione del fascio che lo spostamento del bersaglio [6]. Il sistema controlla le bobine di scansione, per muovere il fascio sul bersaglio, e un sistema motorizzato a tre assi, che consente di muovere il bersaglio con elevatissima precisione e sensibilità sul piano X-Y ortogonale al fascio; anche il movimento su Z, parallelo al fascio, è controllato dal sistema, per consentire il posizionamento del bersaglio sul punto di fuoco del fascio (*beam waist*). Tre motori miniaturizzati attuano il movimento; encoder ottici garantiscono una riproducibilità di posizionamento nominale migliore di 1 μm . La corsa dei motori consente analisi di aree fino a $25 \times 25 \text{ mm}^2$.

Il sistema composto dal portabersaglio insieme ai tre motori di posizionamento fine è montato su un secondo *stage* motorizzato X-Y-Z col quale si possono controllare spostamenti fino a 200 mm, con una riproducibilità nominale di 20 μm .

La nostra modalità standard di analisi è basata sulla scansione integrata: si comunica al sistema di acquisizione una serie di posizioni del bersaglio; per ognuna di queste viene fatta una

¹ Uno spot di 10 μm si raggiunge su un bersaglio tenuto a circa 200 mm dalla lente di foccheggiamento forte, gli ultimi 2 mm dei quali in atmosfera.

scansione magnetica. È così possibile ricostruire mappe relative alla globalità della regione scandita unendo tutte le mappe ottenute con le singole scansioni magnetiche in un'unica "super mappa" [4].

2.3 La finestra di uscita del fascio

Lavoriamo con finestre standard di nitruro di silicio (Si_3N_4) utilizzate normalmente nei microscopi elettronici a trasmissione (TEM) [7]; si tratta di membrane quadrate, spesse 100 nm e larghe 1 mm, su *frame* quadrati di 2.6 mm di lato. Queste finestre mostrano eccellenti caratteristiche di resistenza meccanica e alla radiazione; inoltre, usando fasci di protoni di energie dell'ordine dei MeV, queste finestre inducono un allargamento del fascio molto limitato, come pure una modesta perdita di energia e *straggling*.

3 Le caratteristiche del fascio

Nelle usuali condizioni di misura, protoni da 3 MeV e correnti fino a qualche nA, il fascio in vuoto ha dimensioni $\sim 7 \times 5 \mu\text{m}^2$ FWHM (Full Width Half Maximum). Con finestra da 100 nm e 2 mm in elio, in condizioni normali, si arriva ad avere sul bersaglio in atmosfera larghezza: $10 \times 8 \mu\text{m}^2$ FWHM e intensità fino a qualche nA.

La figura 2 mostra i profili di intensità su X e Y così ottenuti.

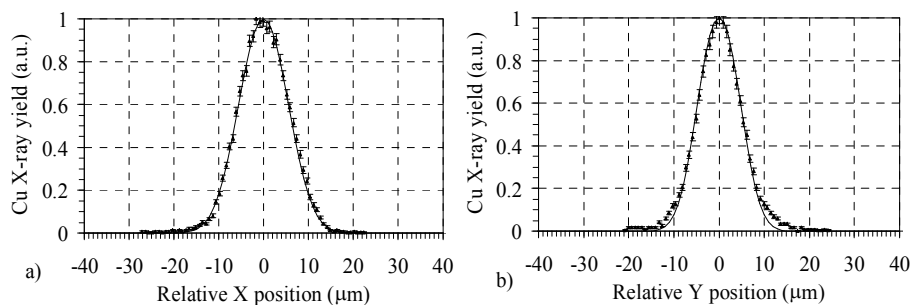


Figura 1 Profili orizzontale (a) e verticale (b) del fascio, ottenuti con una scansione del fascio di protoni da 3 MeV attraverso una barretta di rame di $10 \mu\text{m}$ di spessore (in (a) abbiamo usato una barretta verticale per ricavare il profilo orizzontale del fascio, in (b) una orizzontale per quello verticale). I punti corrispondono alla resa di raggi X del Cu e sono riportati in funzione della posizione del fascio. Da queste curve, con una deconvoluzione che tiene conto della larghezza finita della barretta di rame (step function di $10 \mu\text{m}$), e assumendo per l'intensità del fascio una distribuzione gaussiana, abbiamo ottenuto la larghezza del fascio nelle due direzioni.

3.1 La visualizzazione del bersaglio

Una efficace visualizzazione ottica del bersaglio è essenziale per le applicazioni in generale e per quelle nel campo dei beni culturali in particolare, data la particolare delicatezza e sensibilità dei campioni che tipicamente si trattano; una buona visualizzazione richiede resa cromatica fedele, illuminazione a luce fredda con più diffusori orientabili indipendentemente, possibilità di variare ingrandimento e direzione di osservazione. Il nostro sistema, sviluppato e ottimizzato in particolare nel corso di questa tesi, consta adesso di tre telecamere molto compatte con ingrandimento variabile. Due telecamere a micro CCD consentono una visione microscopica del campione, sino a un campo di vista di $200 \times 200 \mu\text{m}^2$; la terza telecamera è utilizzata per una visione panoramica del bersaglio (campo di vista fino a $25 \times 25 \text{mm}^2$). La telecamera che guarda il campione sul davanti è usata come un microscopio ottico e dà una immagine fortemente ingrandita del lato del campione su cui si fa la scansione; l'altra microtelecamera è usata anche per controllare il bersaglio quando si studiano bersagli sottili trasparenti. Il sistema è efficace, sia per identificare la zona da studiare che per controllare il bersaglio durante le misure, cosa di particolare importanza nelle misure su oggetti di interesse artistico, tipicamente molto delicati.

3.2 Sistema di misura della carica fluita

Il sistema sviluppato sfrutta la resa dei raggi X prodotti dal fascio nella finestra di uscita del fascio come misura indiretta della carica fluita sul campione [8]. Abbiamo modificato il nasino di uscita del fascio in modo che un rivelatore compatto (Si-PIN Photodiode, ~ 13 cm lunghezza globale per rivelatore, raffreddatore e preamplificatore) potesse contare i raggi X del silicio emessi dalla finestra (che è di nitruro di silicio) durante il bombardamento del campione col fascio. Il rivelatore è posto sotto il nasino, a circa 40° rispetto al fascio. Questo rivelatore conta i raggi X del silicio attraverso un'apertura sul fondo del nasino stesso, sigillata con un foglio polimerico spesso circa $7 \mu\text{m}$ (50% di trasmissione per gli X del silicio), come mostrato nella figura 3.

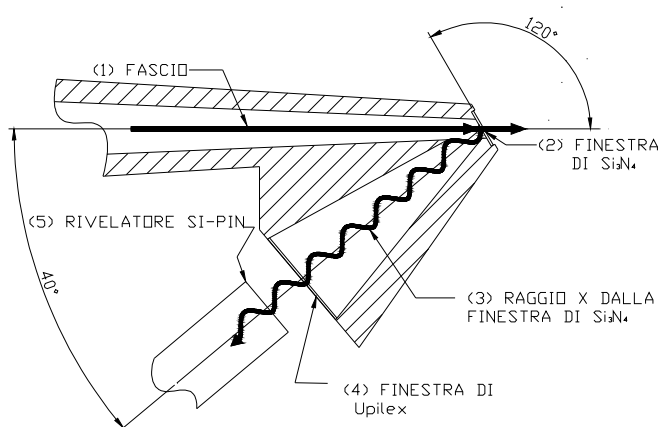
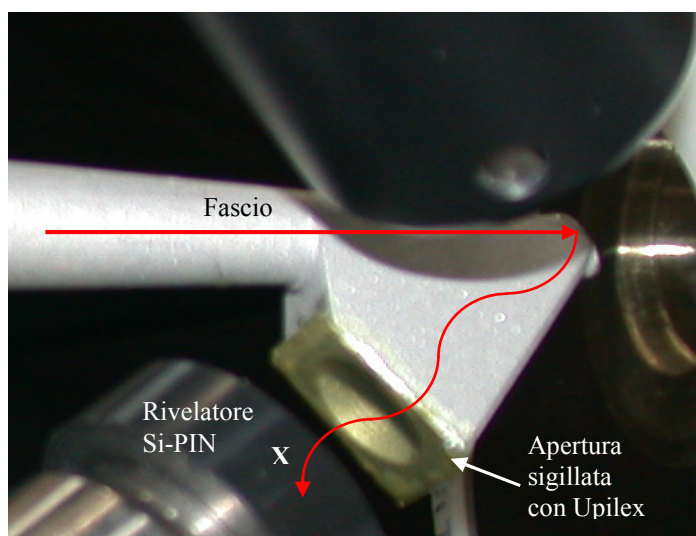


Figura 2 In alto: parte finale del nasino di estrazione del fascio; in evidenza l'apertura per la rivelazione degli X del silicio emessi dalla finestra; è chiaramente visibile anche la membrana di Upilex che sigilla la parte posteriore del nasino. In basso: progetto CAD usato per la lavorazione del nasino (sezione verticale sul piano mediano).

Il punto di impatto del fascio sul bersaglio resta esterno all'angolo solido sotteso dal rivelatore Si-PIN, di modo che quest'ultimo conti solo i raggi X del silicio prodotti nella finestra.

4 *Acquisizione-rivelazione*

Il sistema di acquisizione OM-DAQ controlla fino a otto rivelatori, gestisce l'acquisizione e la memorizzazione dei dati e il sistema di scansione integrata [9]. I dati sono letti e organizzati in spettri di 4096 canali (conteggi in funzione dell'energia) e in mappe elementali fino a 256×256 pixel. La mappa di un elemento è un'immagine a colori: ogni punto della mappa corrisponde a un punto bombardato dal fascio sulla superficie del campione; il colore dei pixel rappresenta il

numero di eventi rivelati, di energia appartenente a un intervallo definito dall'utente, quando il fascio si trova nel punto corrispondente a quel pixel.

4.1 Micro-PIXE

Come è ormai la norma da molti anni nel nostro laboratorio [10], per le misure PIXE si usano due rivelatori, SMALL e BIG, ottimizzati per la rivelazione dei raggi di bassa e medio alta energia rispettivamente. Lo SMALL è tipicamente tenuto a 5-6 cm dal bersaglio e viene collimato, per ridurre il ritmo di conteggio, normalmente alto. Su questo rivelatore è montato un naso conico di plastica, nel quale fluisce elio, per ridurre l'assorbimento degli X di bassa energia. È possibile avvicinare il BIG fino a circa 20 mm dal campione, senza ostruire l'angolo solido di vista del rivelatore.

4.2 Micro-BS

I protoni che rifulano sui nuclei del bersaglio sono rivelati da un fotodiode Si-PIN montato in un involucro a tenuta di vuoto. Il *case* del rivelatore ha un naso conico lungo 100 mm, rivolto verso il campione; l'ingresso è sigillato con una finestra di Si_3N_4 alluminata ($\sim 100 \text{ nm Si}_3\text{N}_4 + \sim 100 \text{ nm Al}$). Una pompa mantiene la pressione all'interno del contenitore a $\sim 0.5 \text{ mbar}$. Il rivelatore è tipicamente a un angolo di 140° col fascio.

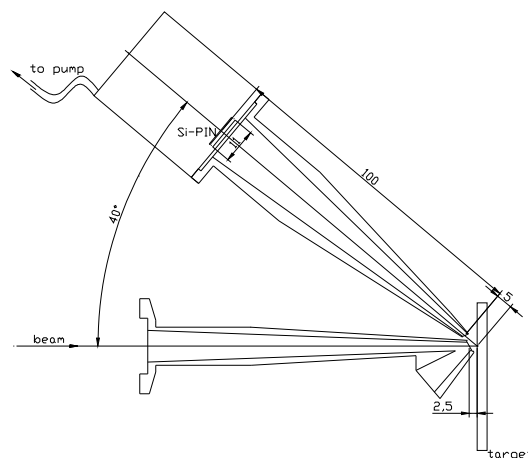


Figura 1 Assieme del rivelatore di particelle; distanza finestra di ingresso-bersaglio $\sim 5 \text{ mm}$; distanza rivelatore- bersaglio $\sim 105 \text{ mm}$ (100 mm in vuoto, 5 mm in He).

Un flusso d'elio dedicato aiuta a ridurre lo stragglings energetico delle particelle nei pochi millimetri di percorso esterno tra la finestra di uscita e il bersaglio e, dopo l'urto, nel tratto verso il rivelatore [11], [12], [13].

4.3 Micro-PIGE

Oltre al BS, anche la tecnica PIGE estende le capacità delle analisi, in parte superando alcuni limiti del PIXE per la rivelazione e/o quantificazione degli elementi a basso Z, in particolare quando tali elementi si trovano sotto i primi strati della superficie del campione. Per la rivelazione dei raggi γ , la geometria del *set-up*, completamente libera nella zona dietro il campione, consente l'uso di ogni tipo di rivelatore, di maggior o minor volume attivo, a seconda delle energie dei raggi γ che si vogliono rivelare.

Per aumentare l'angolo solido sotteso, il rivelatore per le misure PIGE è montato proprio dietro al bersaglio, sull'asse del fascio; in questo modo si riescono ad avere angoli solidi sottesi consistenti, anche di qualche steradiante (tipicamente 2-3 sr).

Come esempio di complementarità tra misure PIXE e PIGE, nella figura 5 si riportano la mappa PIXE del Ca (raggi X da 3.7 keV) e PIGE del F (raggi γ da 197 keV) ottenute dall'analisi di un campione di Fluorite (CaF_2) con un fascio di protoni da 3 MeV e una finestra di Si_3N_4 , larga $2 \times 2 \text{ mm}^2$ e spessa 200 nm; l'angolo solido sotteso dal rivelatore γ era ~ 3 sr. Come si può notare dalla figura 5, la correlazione tra le due mappe è evidente.

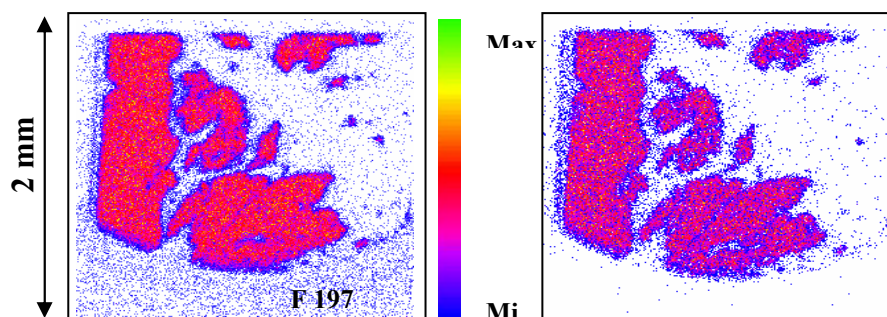


Figura 2 Mappe PIGE del F e PIXE del Ca ottenute con un'analisi su una sezione sottile contenente Fluorite (CaF_2), usando una finestra di uscita del fascio da $2 \times 2 \text{ mm}^2$ (tempo di acquisizione 30 minuti, corrente di fascio 2 nA).

4.4 Micro-IL

Le analisi della luminescenza indotta da fasci di ioni con energie dell'ordine dei MeV (IL) hanno attirato un considerevole interesse da parte della comunità IBA negli ultimi anni [14], [15].

Questa tecnica infatti può dare informazioni sullo stato chimico di alcuni elementi e quindi complementare i dati che si ottengono con le tecniche IBA più tradizionali, quali PIXE, BS e PIGE [16] [17] [18]. Anche la IL, come BS e PIGE, estende le capacità analitiche del nostro strumento, superando nei casi favorevoli alcune limitazioni del PIXE.

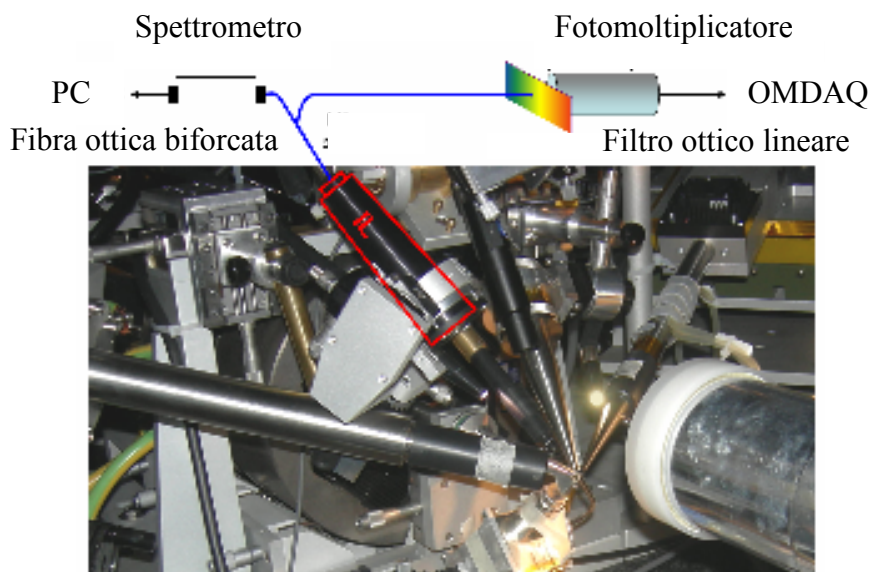


Figura 3 Schema del punto di misura con il nuovo apparato di ionoluminescenza.

La luce prodotta dal fascio di protoni che incide sul campione è raccolta da una lente e focalizzata sulla terminazione comune di una fibra ottica. Gli spettri IL vengono acquisiti connettendo una delle due estremità della fibra biforcata allo spettrometro, come mostrato nella figura qui sopra. Le caratteristiche principali del nuovo apparato IL sono l'alta efficienza di raccolta dei fotoni emessi dal bersaglio durante col bombardamento col fascio e la capacità di ottenere mappe di luminescenza, sia monocromatiche che pancromatiche, simultaneamente all'acquisizione di spettri IL. Questo sistema estende le capacità analitiche del microfascio, consentendo una identificazione più rapida e semplice delle fasi chimiche analizzate.

5 Conclusioni

Il microfascio esterno a scansione del laboratorio LABEC a Firenze è un strumento col quale caratterizzare campioni con analisi simultanee PIXE, BS, PIGE e IL. Il sistema di scansione magnetica consente di acquisire mappe su aree fino $2 \times 2 \text{ mm}^2$; la risoluzione spaziale è migliore di $10 \text{ }\mu\text{m}$ con finestre fino a $1 \times 1 \text{ mm}^2$ e rimane entro $20 \text{ }\mu\text{m}$ quando si usano membrane da $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Con la scansione integrata si possono mantenere queste caratteristiche per mappe fino $25 \times 25 \text{ mm}^2$, usando i motori ad alta risoluzione.

Bibliografia

- ¹ P. Del Carmine, F. Lucarelli, P.A. Mandò and A. Pecchioli, *Nucl. Instr. & Meth.*, B75, (1993), 480-484
- ² J.D. MacArthur, D. Amm, K.M. Barfoort and M. Sayer, *Nucl. Instr. & Meth.*, 191, (1981), 204
- ³ C.P. Swann and S.J. Fleming, *Nucl. Instr. & Meth.*, B22, (1987), 407-410
- ⁴ M. A.Ontalba Salamna et al, in via di pubblicazione su *Nucl. Instr. & Meth.*, 7^a Conferenza Internazionale sulla Tecnologia e Applicazioni delle Microsonde Nucleari ICNMTA 2000).
- ⁵ L. Giuntini, M. Massi, S. Calusi, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A* 576 (2007) 266–273;
- ⁶ M. Massi, L. Giuntini, N. Grassi, M.E. Fedi, C. Arilli, A. Migliori, P.A. Mandò and E. Focardi, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 219–220 (2004) 722–726;
- ⁷ H. W. Lefevre and R. M. S. Schofield, D. R. Ciarlo, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 54, (1991) 47-51;
- ⁸ T. Calligaro, J.-C. Dran, E. Ioannidou, B. Moignard, L. Pichon, J. Salomon, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 161-163, (2000), 328-333;
- ⁹ G. W. Grime and M. Dawson, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 104, (1995), 107-113;
- ¹⁰ P. Del Carmine, F. Lucarelli, P. A. Mandò and A. Pecchioli, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 75, (1993), 480-484;
- ¹¹ L. Giuntini and P. A. Mandò, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 85, (1994), 744-748;
- ¹² E. Ioannidou, D. Bourgarit, T. Calligaro, J.-C. Dran, M. Dubus, J. Salomon, P. Walter, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 161-163 (2000) 730-736;
- ¹³ C. Neelmeijer, W. Wagner and H. P. Schramm, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 118, (1996), 338-345;
- ¹⁴ H. Calvo del Castillo, J. L. Ruvalcaba, T. Calderòn, *Anal. Bioanal. Chem.* 387 (2007), 869;
- ¹⁵ A. Quaranta, J. Salomon, J.C. Dran, M. Tonezzer, G. Della Mea, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 254 (2007) 289–294;
- ¹⁶ K.G. Malmqvist, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 104 (1995), 138;
- ¹⁷ S. Calusi, E. Colombo, L. Giuntini, A. Lo Giudice, C. Manfredotti, M. Massi, G. Pratesi and E. Vittone, *Nucl.Instr.&Meth.B* 266 (2008), Issue 10;
- ¹⁸ E. Colombo, S. Calusi, R. Cossio, L. Giuntini, A. Lo Giudice, P.A. Mandò, C. Manfredotti, M. Massi, F.A. Mirto and E. Vittone, *Nucl.Instr.&Meth.B* 266 (2008), Issue 8.