

Laboratori Nazionali di Frascati

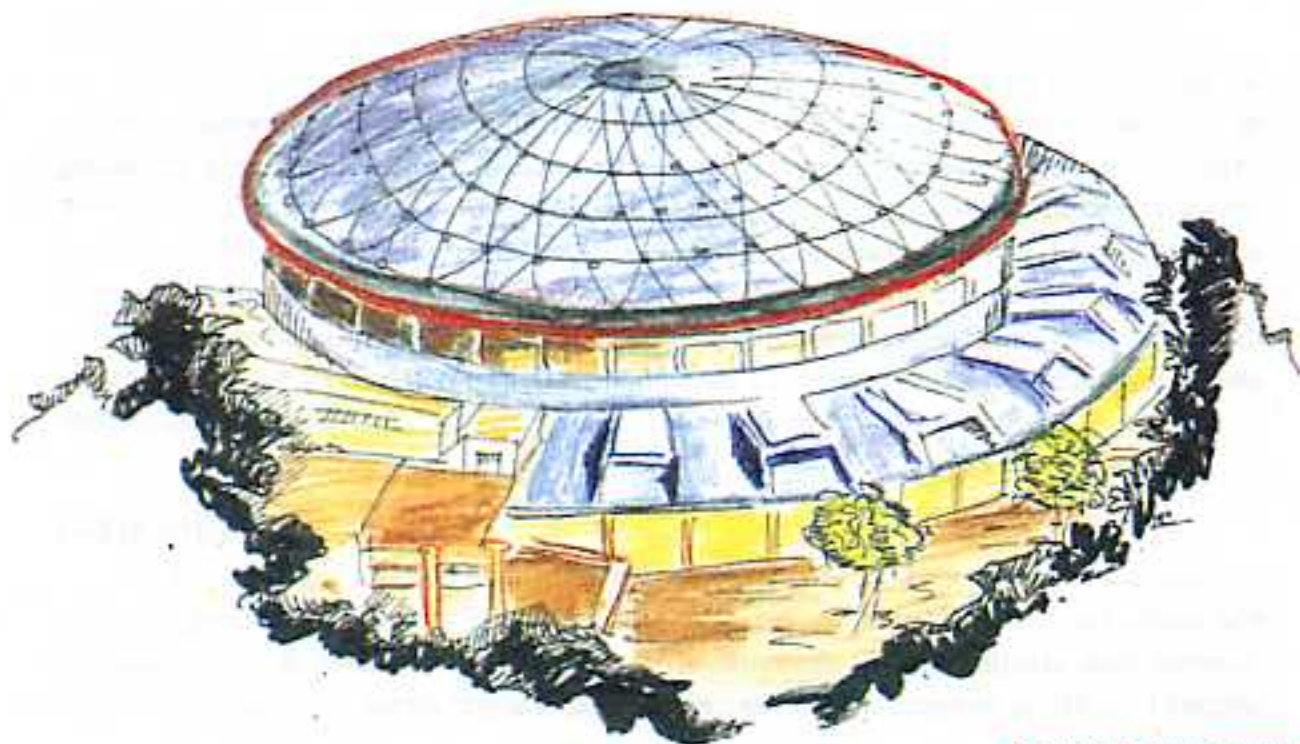
LNF-93/010 (IR)

8 Marzo 1993

A. La Monaca, E. Burattini, F. Rustichelli:

"USVAS" NUOVO E VERSATILE APPARATO DI DIFFUSIONE AD ANGOLO VARIABILE ULTRA-PICCOLO CON LUCE DI SINCROTRONE.

PACS.: 61.10.Lx



LNF-93/010 (IR)

8 Marzo 1993

"USVAS"

**NUOVO E VERSATILE APPARATO DI DIFFUSIONE AD ANGOLO
VARIABILE ULTRA-PICCOLO CON LUCE DI SINCROTRONE**

A. La Monaca

INFN – Laboratori Nazionali di Frascati, P.O.Box 13, I-00044 Frascati, Italia

E. Burattini

Facoltà di Medicina dell'Università di Verona, I-37100 Verona, Italia

INFN – Laboratori Nazionali di Frascati, P.O.Box 13, 00044 I-Frascati, Italia

F. Rustichelli

Istituto di Scienze Fisiche, Università di Ancona, via Ranieri Monte D'Ago 65, I-60131 Ancona, Italia

SOMMARIO

Viene descritta la possibilità di allestire un nuovo versatile apparato di diffusione ad angolo variabile ultra-piccolo con luce di sincrotrone di DAΦNE per lo studio di particelle di grandezza quasi-micrometrica, nanocristalli e in aggregati di materia condensata (super-particelle organizzate anche in forma multi-frattale) le cui conformazioni non possono essere investigate con i metodi e gli apparati tradizionali. Il nuovo strumento consiste di un sistema alla Bonse-Hart a geometria variabile ed di un apparato di rivelazione che usi principalmente il rivelatore a camera a drift nella sua avanzata versione, già operante con la luce di sincrotrone di Frascati, ed opportuni rivelatori a CCD retro-illuminati con acquisizione dell'immagine diffusa anche in tempo reale.

INTRODUZIONE

E' noto che ogni apparato di diffusione a piccolo angolo presenta una regione di apertura angolare geometrica minima $2\Theta_{\min}$, attorno al fascio primario di luce, inaccessibile alla sperimentazione. E' noto anche che, a causa della radiazione parassita diffusa dagli elementi ottici di collimazione, questa regione copre un angolo $2\Theta'_{\min}$ maggiore di $2\Theta_{\min}$. Compito

principale della tecnica di diffusione a piccolo angolo è quello di far tendere $2\Theta'_{\min}$ a $2\Theta_{\min}$ e di rendere sempre più piccolo $2\Theta_{\min}$ al fine di estendere le applicazioni ai sistemi costituiti da grandi unità diffondenti. La luce di sincrotrone a causa della sua naturale alta collimazione è una sorgente ideale per tali scopi. Tuttavia la macchia focale della sorgente a livello degli apparati sperimentali di utilizzo, posti a grande distanza, può risultare troppo grande senza un'ulteriore collimazione.

Così, ad esempio, usando particelle di dimensioni $d=1000 \text{ \AA}$ e radiazione di lunghezza d'onda $\lambda=2 \text{ \AA}$, la regione di diffusione interessata coprirebbe solo pochi decimi ($\sim 7'$) di grado, come si può vedere dalla relazione di Bragg $2\Theta_{\text{exp}}=\lambda/d$. Pertanto l'intera curva sperimentale di diffusione si estenderebbe attorno all'angolo zero su un rivelatore, posto ad una distanza $L=200 \text{ mm}$ dal campione, per soli $x=400 \text{ \mu m}$, come si ricava dalla relazione geometrica $2\Theta_{\text{exp}}=x/L$. Per particelle ancora più grandi, del diametro dell'ordine del micron, come quelle dei sistemi biologici (virus), la curva di diffusione verrebbe compressa entro dieci micron. In tal caso occorrerebbe una finestra di collimazione della radiazione incidente con apertura inferiore al micron, meccanicamente impossibile da realizzare, e l'intensità diffusa sarebbe sovrapposta all'intensità primaria.

Per separare i due effetti bisognerebbe aumentare la distanza campione-rivelatore di più di due ordini di grandezza ($20\text{--}25 \text{ m}$) [1]. Il sistema diventerebbe impraticabile a causa dell'accurato allineamento richiesto e della ridotta intensità diffusa, che decresce come il quadrato della distanza.

Noi proponiamo invece di costruire un nuovo apparato, di grandezza geometrica 'standard', la cui alta risoluzione angolare può essere variata secondo le esigenze. L'apparato sperimentale suggerito è costituito da un dispositivo a doppio cristallo, del tipo introdotto per primo da Bonse-Hart [2], accoppiato ad un rivelatore elettronico di posizione di alta risoluzione spaziale per la lettura della intensità diffusa [3].

L'alta risoluzione angolare del dispositivo a doppio cristallo è ottenuta ricorrendo alle riflessioni multiple del fascio primario sui lati opposti di una scanalatura a faccie piane parallele ricavate in un cristallo ideale di silicio (o germanio). Ruotando il secondo cristallo con scanalatura uguale al primo, è possibile selezionare angoli di diffusione estremamente piccoli (alcuni secondi di arco) [4].

Le riflessioni multiple però riducono l'intensità del fascio primario, per cui una sua utilizzazione per i sistemi di bassa risoluzione angolare nella versione data da Bonse-Hart non ha avuto in passato la dovuta attenzione.

Ma per i sistemi che richiedono un'alta risoluzione angolare, essendo l'intensità diffusa a piccolo angolo enormemente più grande di parecchi ordini di grandezza, una riduzione dell'intensità del fascio primario è accettabile. Tali sistemi infatti hanno un peso molecolare M da 3 a 9 ordini di grandezza più grande degli altri e un tale incremento in M comporterà di conseguenza un altrettanto incremento dell'intensità diffusa ad angolo zero, come si può vedere facilmente dalla formula:

$$M = 21 L^2 I(0) / I_0 D z^2 d c$$

dove L è la distanza campione rivelatore, $I(0)$ è l'intensità diffusa ad angolo zero, I_0 è l'intensità primaria, d spessore del campione e c concentrazione del campione.

Inoltre, usando un'apertura variabile del canale di Si del secondo cristallo, come noi proponiamo, è possibile scegliere il numero delle riflessioni del fascio nel doppio cristallo ed aumentare così l'intensità diffusa, qualora la misura richiedesse una più bassa risoluzione angolare [5].

APPARATO USVAS

Con riferimento alla Fig 1, descriviamo dapprima il principio di funzionamento dell'apparato USVAS (ultra-small angle variable scattering) proposto nella versione semplificata di Bonse-Hart (cioè a due cristalli singoli).

Il fascio di luce viene monocromatizzato dal cristallo M_1 e inviato dentro la scanalatura a faccie piane parallele B_1 del primo cristallo singolo di Si. La scanalatura è tagliata nella direzione parallela al piano (200) del cristallo di Si. Il fascio dentro il canale è soggetto a riflessioni multiple ed esce da B_1 strettamente monocromatico e con soli alcuni secondi d'arco di divergenza, poichè per ogni riflessione ricevuta decresce la divergenza angolare.

Dopo aver colpito il campione, il fascio d'uscita va a riflettersi sulle pareti piane della seconda scanalatura B_2 di un secondo cristallo singolo di Si con taglio perfettamente uguale al primo. Questo secondo cristallo è libero di ruotare attorno al suo centro su un'asse perpendicolare al fascio, rendendo possibile la variazione dell'angolo d'ingresso del fascio nella scanalatura B_2 . Questa rotazione permette di selezionare piccolissimi angoli di 'scattering' dal campione. Infatti se il cristallo B_2 è ruotato di un angolo 2θ , rispetto alla sua posizione parallela al primo cristallo B_1 , solo la radiazione diffusa dal campione con lo stesso angolo 2θ potrà passare dentro B_2 e raggiungere il rivelatore. Ruotando questo cristallo micrometricamente per passi successivi, la radiazione diffusa può essere misurata a piccolissimi angoli senza essere influenzata dal fascio primario.

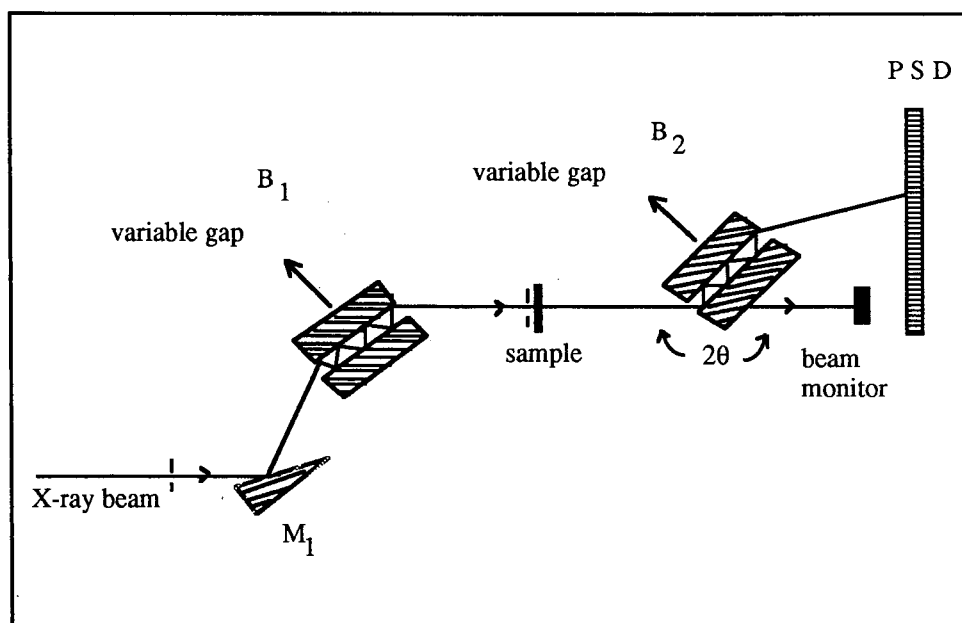


FIG. 1 – Apparato USVAS: M_1 , monocromatore; B_1 , primo cristallo, a faccie piane e parallele con taglio asimmetrico e distanza variabile; B_2 , secondo cristallo, selettore di angolo tramite la rotazione 2θ , ma perfettamente uguale al primo per il resto; PSD, 'position sensitive detector' della radiazione diffusa.

Lo strumento così descritto diversamente da ogni altro apparato di 'small angle scattering' non usa fenditure meccaniche di collimazione e fornisce per tutti gli angoli sempre la stessa costante intensità primaria. Confrontato con la tradizionale 'Kratky camera' di diffusione a piccolo angolo è possibile tracciare il grafico di Fig. 2, dove si vede che i due strumenti si intersecano ad angoli corrispondenti a spaziature di Bragg di 7000 \AA [5].

Per particelle superiori a queste grandezze appare evidente il vantaggio del dispositivo descritto. Per particelle di dimensioni inferiori sembrerebbe più vantaggioso il secondo strumento, se non dovessimo tenere conto degli altri inconvenienti sopra accennati.

Tuttavia è possibile superare questa difficoltà, variando l'apertura del canale del cristallo singolo di Si. E' sufficiente sostituire questo con due indipendenti barrette di cristallo dello stesso materiale con le facce perfettamente allineati tra loro e poste ad una distanza meccanicamente variabile (variable gap). In tal modo è possibile diminuire le riflessioni multiple, fino ad ottenerne una sola, e aumentare l'intensità necessaria per quelle particelle le cui dimensioni richiederebbero una minore risoluzione angolare [6]. Inoltre un taglio asimmetrico dei piani cristallini delle barrette di silicio aumenterebbe ulteriormente l'intensità disponibile. I grafici dell'intensità primaria alle varie riflessioni dello strumento USVAS, in quest'ultima versione da noi proposto, vengono riportati a confronto nella Figura 2.

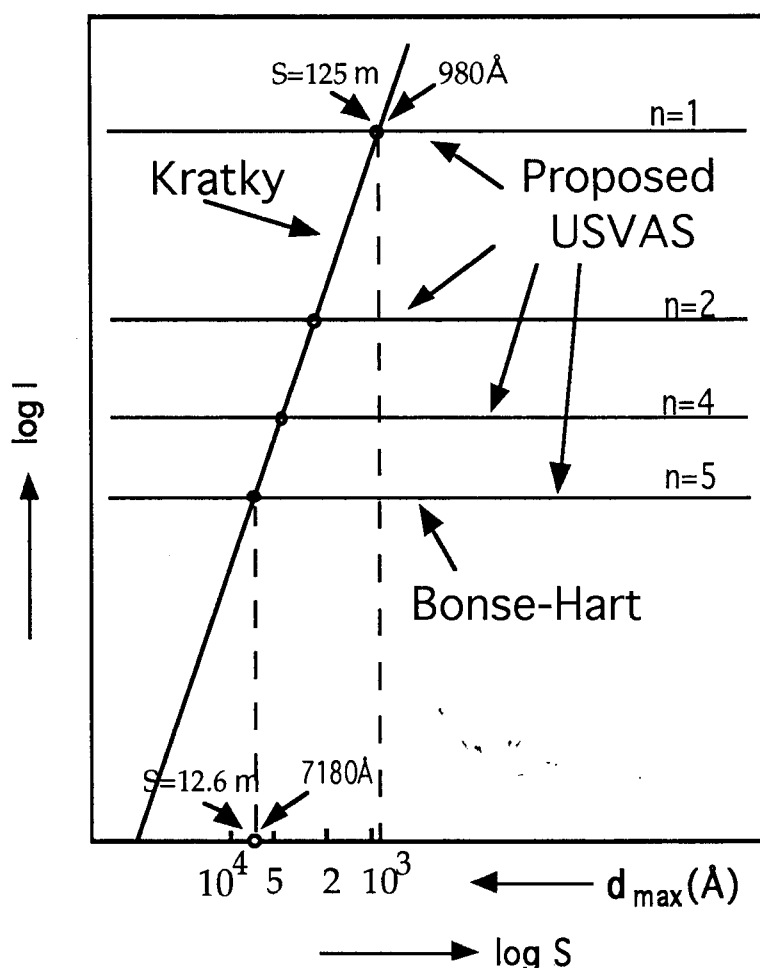


FIG. 2 – Confronto delle intensità d'uscita tra gli strumenti di Bonse-Hart, di Kratky ed il USVAS da noi proposto (n indica il numero delle riflessioni sul secondo cristallo).

RIVELATORI

Il progetto prevede di accoppiare il dispositivo descritto a rivelatori elettronici, lineari e bidimensionali, sensibile alla posizione di alta risoluzione spaziale. E' possibile usare sia l'esistente apparecchiatura del rivelatore a gas a camera a drift, operante da più di dieci anni a Frascati con luce di sincrotrone [3,7,8], nella sua ultima avanzata versione, dotata di alta risoluzione spaziale in entrambe le coordinate e veloce acquisizione dati (~1MHz) [3], sia i dispositivi a stato solido CCD, ultrasottili e retroilluminati, o ibridi, gas-CCD, in fase di avanzata sperimentazione ai LNF dell'INFN [9,10].

La camera a drift può essere usata in rivelazione di singola o doppia coordinata spaziale. Nel primo caso si può scegliere di usare la coordinata di drift, operante con la luce pulsata di sincrotrone, o quella ortogonale a questa, costituita da una linea di ritardo, che non richiede alcun riferimento temporale associato all'evento. A causa della limitata regione spaziale da esplorare, i tempi di drift possono essere compatibili con intervalli temporali brevi degli impulsi di luce di sincrotrone, inoltre è possibile usare linee di ritardo di piccola lunghezza ed alta densità di ritardo, che possono dare risoluzioni spaziali confrontabili con quella di drift.

L'uso del rivelatore bidimensionale è richiesto invece quando i sistemi fisici hanno diffusione anisotropica [8]. E' il caso ad esempio dei sistemi frattali con crescita preferenziale in qualche direzione. Questi sistemi presentano almeno due differenti indici di frattalità, uno nella direzione di crescita del materiale e l'altro nella direzione ortogonale [11]. In questo caso il rivelatore a camera a drift fornirebbe la mappa della distribuzione di crescita del materiale e la immediata visualizzazione dei due (o più) indici frattali associati.

Per quei sistemi fisici invece che presentano diffusione anisotropica in evoluzione temporale, il precedente rivelatore ad integrazione non risulta adeguato e in tali casi risulta essenziale usare CCD matriciali o dispositivi ibridi gas-CCD, come precedentemente detto. Questi rivelatori possono acquisire immagini anche in tempo reale, se questo risulta inferiore al tempo di scansione del cristallo selettore della radiazione diffusa. I dispositivi a CCD più promettenti per i nostri scopi sono quelli del tipo retro-illuminati, cioè idonei a ricevere la radiazione incidente dalla parte posteriore, e meccanicamente assottigliati a seconda dell'energia della radiazione da rivelare in modo da non subire danneggiamento sotto alto flusso fotonico [12].

In conclusione lo strumento sopra descritto offre una potenzialità di studio per la determinazione dei parametri dimensionali delle particelle quasi-micrometriche superiori a quelle degli apparati tradizionali. Basta pensare, ad esempio, al microscopio elettronico a scansione, per il quale i campioni da studiare debbono essere costituiti da particelle isolate e subire sempre degli artefatti (coloranti di contrasto o di protezione nel caso di materiale danneggiabile dal fascio di elettroni o degradabile per il vuoto), che pregiudicano la corretta interpretazione dei dati. In quest'ultimo caso appare evidente il contributo che potrebbe dare l'apparato USVAS alla determinazione accurata delle dimensioni delle particelle virali della moderna bio-medicina, che vengono classificate in base alla loro *grandezza fisica* (oltre che alla presenza di DNA-RNA e di membrana limitante la particella).

REFERENCES

- [1] P. Stasiecki and H. B. Stuhmann, *J. Appl. Cryst.*, **11** (1978)1.
- [2] U. Bonse and M. Hart, *Z. Phys.*, **189** (1966)151.
- [3] A. La Monaca, M. Barteri, E. Borghi, A. Congiu-Castellano, G. Cappuccio, M. Beltrami, B. Salvato and J.S. Shah, *Nucl Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **A310** (1991)403.
- [4] H. Matsuoka, K. Kakigami, N. Ise, Y. Kobayashi, Y. Machiotani, T. Kikuchi and T. Kato, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **88** (1991)6618.
- [5] O. Kratky and H. Leopold, *Makrom. Chem.*, **133** (1970)181.
- [6] M. Deutsch, *J. Appl. Cryst.*, **13** (1980)252.
- [7] A. La Monaca, M. Barteri, M. Beltramini, E. Borghi, A. Congiu-Castellano, B. Salvato and J. S. Shah, *Chem. Phys. Letts.* **184** (1991)1.
- [8] J.S. Shah, A. La Monaca, A. Bigi, N. Roveri, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.* **A308** (1991)285.
- [9] A. La Monaca, P. Ottonello M. Piacentini, G.A. Rottigni and N. Zema, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **A292** (1990)191.
- [10] A. La Monaca, M. Lemonnier, N. Zema, NID Report, (Gruppo V INFN) to be published, 1993.
- [11] A. La Monaca, E. Borghi, M. Barteri, M. Beltramini, B. Salvato, A. Congiu-Castellano and J. S. Shah, *Phys. Medica*, vol IX (suppl.1), 1993 (in press).
- [12] A. La Monaca, 'LEXED Report', (Gruppo V INFN) to be published, 1993.