

# **Progetto SPARX**

**Sorgente evolutiva per la produzione  
di radiazione coerente da 13.5 nm a 1.5 nm**

## **CNR**

Avaldi L., Camilloni R. (**I.M.I.P.-C.N.R.**)

Carbone C., Colonna S., Cricenti A., De Padova I.P., Lagomarsino S., Ottaviani C., Perfetti P., Prospero T., Quaresima C., Rossi Albertini V., Zema N. (**I.S.M.-C.N.R.**)

Pifferi A. (**I.C.-C.N.R.**)

## **ENEA**

R. Bartolini, F. Ciocci, G. Dattoli, A. Doria, F. Flora, G. P. Gallerano, L. Giannessi, E. Giovenale, G. Messina, L. Mezi, P. L. Ottaviani, L. Picardi, M. Quattromini, A. Renieri e C. Ronsivalle.

## **INFN**

D. Alesini, S. Bertolucci, M. E. Biagini, C. Biscari, R. Boni, M. Boscolo, M. Castellano, A. Clozza, G. Di Pirro, A. Drago, A. Esposito, M. Ferrario, V. Fusco, A. Gallo, A. Ghigo, S. Guiducci, M. Incurvati, P. Laurelli, C. Ligi, F. Marcellini, M. Migliorati, C. Milardi, L. Palumbo, L. Pellegrino, M. Preger, R. Ricci, C. Sanelli, F. Sgamma, B. Spataro, A. Stecchi, A. Stella, F. Tazzioli, C. Vaccarezza, M. Vescovi, V. Verzilov, C. Vicario, M. Zobov (**INFN /LNF**)

E. Acerbi, F. Alessandria, D. Barni, G. Bellomo, C. Birattari, M. Bonardi, I. Boscolo, A. Bosotti, F. Broggi, S. Cialdi, C. DeMartinis, D. Giove, C. Maroli, P. Michelato, L. Monaco, C. Pagani, V. Petrillo, P. Pierini, L. Serafini, D. Sertore, G. Volpini (**INFN /Milano**)

E. Chiadroni, G. Felici, D. Levi, M. Mastrucci, M. Mattioli, G. S. Petrarca (**INFN /Roma1**)

## **UNIVERSITÀ DI ROMA “TOR VERGATA”**

S. Stucchi, D. Flamini, C. Schaerf, L. Catani, A. Cianchi, A. Desideri, S. Morante, S. Piccirillo, N. Rosato, V. Sessa, M.L. Terranova

## *Ringraziamenti*

**Si ringraziano tutti i colleghi che hanno contribuito alla definizione delle motivazioni scientifiche del Progetto SPARX (la lista è riportata alla fine del Cap. 2)**

**Si ringraziano inoltre:**

**il dr. W. B. Fawley (LBNL USA) per la concessione dell'uso del codice GINGER il dr. H. P. Freund (NRL USA) per numerose discussioni e per la concessione dell'uso del codice MEDUSA e infine i drs. S. G. Biedron a S. V. Milton (ARGONNE USA) per numerose discussioni e chiarimenti sul meccanismo di generazione di armoniche in FEL di tipo SASE.**

**E' infine doveroso riconoscere l'importante contributo del gruppo di lavoro internazionale EXOTICA che ha permesso la validazione e la caratterizzazione dei codici PROMETEO E MEDUSA sviluppati all'interno dell'ENEA.**

## SOMMARIO

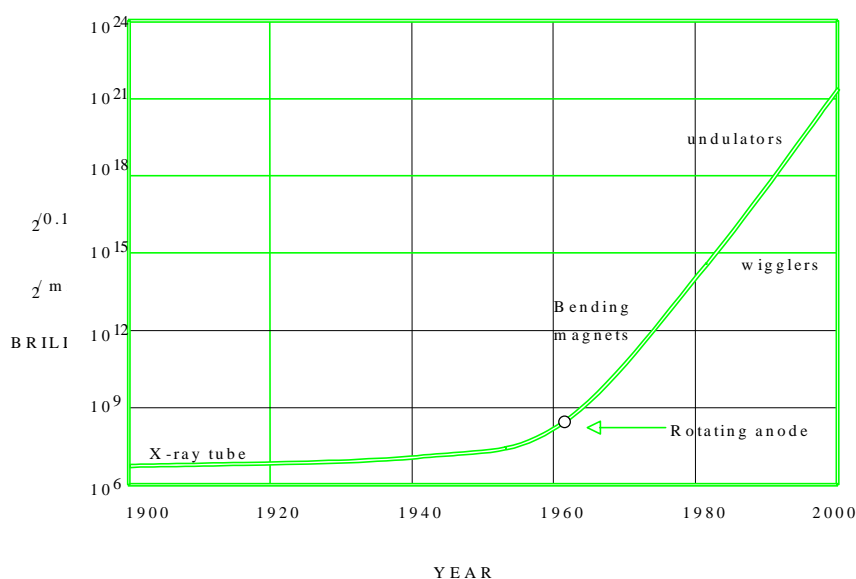
<b>1. Introduzione</b>	<b>5</b>
<b>2. Motivazioni scientifiche</b>	<b>12</b>
<b>3. Impatto della sorgente SPARX sul panorama nazionale e internazionale</b>	<b>116</b>
<b>4. Soggetti partecipanti all'iniziativa e relativo ruolo</b>	<b>118</b>
<b>5. Descrizione delle prestazioni della sorgente SPARX</b>	<b>128</b>
<b>6. Validità ed originalità dei contenuti scientifici e tecnologici e innovatività delle tecnologie</b>	<b>139</b>
<b>7. Coinvolgimento nel progetto di operatori dell'università, degli enti pubblici di ricerca, delle imprese e di altri soggetti pubblici e privati nazionali e internazionali</b>	<b>146</b>
<b>8. Descrizione dettagliata della grande infrastruttura</b>	<b>147</b>
<b>9. Il sito</b>	<b>173</b>
<b>10. Diagramma temporale</b>	<b>181</b>
<b>11. Personale e costi di gestione</b>	<b>182</b>
<b>12. Analisi dei costi globali</b>	<b>183</b>
<b>13. Analisi della struttura di realizzazione e di gestione dell'impresa</b>	<b>184</b>

## 1. INTRODUZIONE

Le sorgenti di luce di sincrotrone hanno giocato un ruolo molteplice nello sviluppo scientifico e tecnologico di quasi un trentennio. Sono state infatti uno strumento di progresso significativo in settori diversi, che coprono campi di ricerca dalla scienza dei materiali, alla microelettronica fino alla genomica strutturale.

Va fatto notare che la domanda, da parte dell'utenza, di fasci di luce di sincrotrone di qualità sempre crescenti, ha determinato notevoli sviluppi scientifici e tecnologici anche in settori diversi come quelli relativi alle macchine acceleratrici, ai materiali magnetici etc....

Una delle quantità che definiscono la "bontà" di una sorgente di luce di sincrotrone è la brillantezza. Un'idea dell'evoluzione della brillantezza di sorgenti di raggi X nel corso di un secolo è fornito dalla figura 1.1.



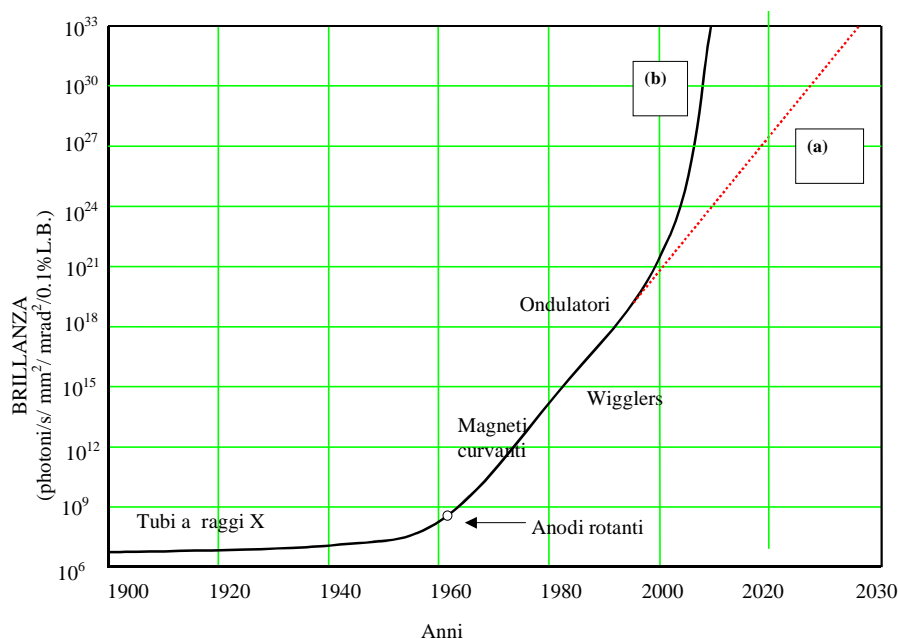
**Fig. 1.1 - Evoluzione storica della brillantezza nell'arco del ventesimo secolo**

L'analisi della figura suggerisce che gli eventi che hanno determinato un significativo incremento sono stati quelli relativi al cambio di metodologia, ovvero l'introduzione dell'anodo rotante verso la metà degli anni sessanta e l'utilizzo delle sorgenti di luce di sincrotrone verso la fine degli anni settanta.

Nell'arco di un ventennio si è potuto assistere ad un incremento della brillantezza di dieci ordini di grandezza .

La progressione fino alle attuali sorgenti, in grado di fornire radiazione X con brillanze superiori a  $10^{20}$  fotoni/sec/0.1%bw/(mm mrad)<sup>2</sup> (unità nel seguito indicate come "uc" (unità convenzionali)), è passata attraverso tre fasi ora note come sorgenti di prima, seconda e terza generazione. Tali fasi sono state caratterizzate dallo sviluppo di macchine acceleratrici di tipo anello di accumulazione con caratteristiche di fascio e di corrente sempre crescenti.

Da una pura estrapolazione del grafico di figura 1.1 (si veda la figura 1.2 a), con l'assunzione che non esistano limitazioni di principio ad ottenere brillanze sempre crescenti utilizzando anelli di accumulazione, si può ipotizzare un incremento di altri 10 ordini di grandezza nell'arco di trenta anni. Ciò a fronte della domanda di un'utenza già matura per esperienze e sviluppi scientifici che implicano valori di brillantezza almeno sei o più ordini di grandezza rispetto a quelli attuali.



**Fig. 1.2 Evoluzione teorica della brillantezza nei prossimi anni:**  
a) estrapolazione del trend di figura 1.1, b) evoluzione prevista con l'impiego di nuove tecnologie di tipo FEL SASE.

È opinione comune che valori di brillantezza dell'ordine di  $10^{23}$  (uc) (che sono i valori massimi finora ottenuti) rappresentino una sorta di valore di soglia difficilmente superabile con la concezione attuale di luce di sincrotrone, ovvero luce di sincrotrone prodotta utilizzando acceleratori come anelli di accumulazione e l'ordinaria emissione di radiazione in wiggler o ondulatori. Infatti il raggiungimento di brillanze più elevate richiederebbe correnti e caratteristiche di fascio difficilmente compatibili con i principi di funzionamento dell'acceleratore stesso.

E' pertanto evidente che la transizione oltre l'attuale valore di "soglia" richiede un salto di tecnologia e quindi un cambiamento di concezione, che come già notato, nel caso dell'introduzione dell'anodo rotante e della luce di sincrotrone, produca nell'evoluzione della brillantezza un notevole cambiamento di derivata.

Parallelamente alle sorgenti di luce di sincrotrone e sempre a partire dalla fine degli anni 70 si è assistito allo sviluppo delle sorgenti di radiazione di tipo laser ad elettroni liberi o FEL

(acronimo di Free Electron Laser). Questi tipi di laser utilizzano intensi fasci di elettroni relativistici, iniettati in ondulatori e possono operare sia come oscillatori che come amplificatori.

Nel primo caso la radiazione viene accumulata, come negli ordinari laser in una cavità ottica e la coerenza si sviluppa dopo un certo numero di interazioni successive fra gli elettroni, l'ondulatore e la radiazione accumulata in cavità.

Nel secondo caso, utilizzato là dove, come nel caso dei raggi X, non esistano specchi adatti per il confinamento, la radiazione coerente viene generata in un solo passaggio di ondulatore e il processo associato è noto come SASE (acronimo di SELF AMPLIFIED SPONTANEOUS EMISSION), analogo, entro certi limiti, al processo di super-radianza dei laser ordinari.

Le sorgenti FEL, che hanno operato dalle microonde ai raggi X-molli con diversi tipi di acceleratori, possono essere considerate come sorgenti di luce di sincrotrone stimulate e costituiscono i naturali candidati per il raggiungimento dei valori delle brillanze prima menzionate.

La possibilità di ottenere tali valori in processi FEL-SASE è assicurata

a) dall'utilizzo di macchine acceleratrici di tipo Linac con brillanze di fascio di elettroni superiori a quelle degli anelli di accumulazione

b) da un processo di emissione con una resa in fotoni superiore di otto ordini di grandezza rispetto all'ordinaria emissione di sincrotrone.

Con riferimento alla figura 1.2 b, tenuto conto degli esperimenti SASE che hanno già operato con successo, sebbene non nella regione spettrale dei raggi X, e tenuto conto delle predizioni teoriche, si può ipotizzare che il cambiamento di tecnologia possa determinare una variazione della curva di crescita della brillantezza tale da assicurare, non solo l'andamento "storico", ma anche valori dell'ordine di  $10^{31}$ - $10^{33}$  (uc) nell'arco di un decennio.

Un dispositivo FEL SASE è un sistema complesso. Esso consta infatti di un acceleratore lineare di alta energia capace di fornire un fascio di elettroni di alta corrente e di bassa dispersione energetica, spaziale ed angolare, che dopo una linea di trasporto viene iniettato in un magnete ondulatore dove parte dell'energia del fascio viene trasformata in radiazione elettromagnetica.

L'ondulatore è un magnete che è caratterizzato da un campo con andamento periodico sull'asse, con un periodo di oscillazione pari a qualche centimetro e con valori massimi pari a qualche kG. In tale struttura magnetica gli elettroni emettono radiazione con larghezza spettrale relativa dell'ordine dello 0.1% , con una lunghezza d'onda centrale direttamente proporzionale al periodo dell'ondulatore e inversamente proporzionale al quadrato dell'energia degli elettroni.

Il processo di amplificazione della radiazione emessa avviene grazie ad un meccanismo simile a quello dei klystron convenzionali, ovvero tramite una modulazione di densità longitudinale

del fascio di elettroni su una scala pari ad una lunghezza d'onda della radiazione, che viene amplificata maggiormente nella regione trasversa centrale dove è più grande la densità di corrente degli elettroni. Tale meccanismo di amplificazione costituisce una sorta di guida che compensa l'effetto di diffrazione tenendo confinato, trasversalmente, il fascio di radiazione durante la propagazione nell'ondulatore che può essere lungo decine di metri.

Insieme a questa lunghezza d'onda, detta anche risonante o fondamentale, è emessa radiazione ad armoniche di ordine superiore che, come vedremo nel seguito, possono essere utilizzate per aumentare l'intervallo di accordabilità del sistema.

Si può ora comprendere come brillanze superiori a  $10^{30}$  (uc) siano ottenibili con tali tipi di sorgente. Infatti, nel processo SASE, circa lo 0.1% dell'energia di picco del fascio, stimabile nell'ordine delle migliaia di GW, viene trasformata in radiazione elettromagnetica nella regione dei raggi X con una larghezza di banda relativa dello 0.1% su una superficie radiante di poco superiore ai  $10^{-9}$  m<sup>2</sup>.

Al momento attuale un certo numero di sorgenti SASE hanno operato con successo. Sebbene la regione di operazione si limiti alle centinaia di nm, i risultati sperimentali ottenuti dimostrano che le previsioni teoriche, e i relativi codici di calcolo, hanno raggiunto un più che adeguato livello di affidabilità e che sono pertanto pienamente legittimati come strumento di progetto.

Come si discuterà più in dettaglio nel seguito, in una sorgente di radiazione X del tipo finora descritto, la funzione FEL SASE e quella di luce di sincrotrone possono convivere. Nel caso della presente proposta si potrà pertanto disporre di fasci di radiazione X coerente e ad alta brillantezza ( $10^{31}$ - $10^{32}$  (uc)) per energie fotoniche che coprono la regione dalle decine di eV fino al KeV e di fasci parzialmente coerenti di ordinaria luce di sincrotrone, ma con brillanze di due ordini di grandezza superiori alle sorgenti convenzionali, nella regione spettrale fino alla decine di KeV.

Chiariti i punti di cui sopra è infine necessario fare ulteriori precisazioni che riguardano i laser a raggi X "convenzionali" e le loro prestazioni confrontate con quelle di un sistema del tipo FEL-SASE.

Il sistema che abbiamo descritto è basato sul processo di emissione da un fascio di elettroni iniettato in un magnete ondulatore senza ulteriori accorgimenti, in maniera tale che la radiazione nasca dalle fluttuazioni dovute al rumore quantistico e allo shot noise. Questo fatto porta ad un inevitabile fase di rumore iniziale, in cui il sistema deve creare le condizioni per raggiungere un adeguato livello di coerenza. Se questa fase potesse essere eliminata, partendo da un segnale già coerente, si potrebbero diminuire le dimensioni dell'intero apparato e si potrebbe disporre di un segnale in uscita con maggiore purezza spettrale.



Soluzioni diverse dal semplice processo SASE possono essere prese in considerazione e saranno argomento di attenta valutazione, anche se tali scelte non determinano alcuna variazione né per quanto concerne la brillantezza né per quanto concerne la potenza.

In particolare, nel caso di operazione alle decine di nm si potrebbero utilizzare le cosiddette soluzioni ibride, in cui il sistema funziona da oscillatore-amplificatore. In particolare si potrà considerare l'apparato mostrato in figura 1.3, costituito da un FEL operante in condizioni di oscillatore e da una seconda sezione operante in condizioni di amplificatore, che potrebbe rappresentare una soluzione di un certo interesse.

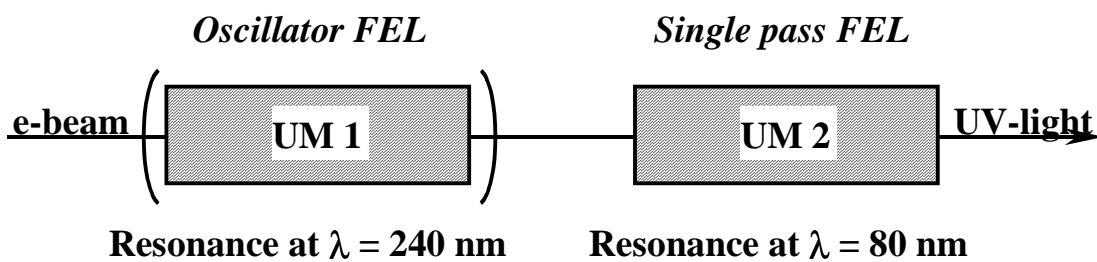


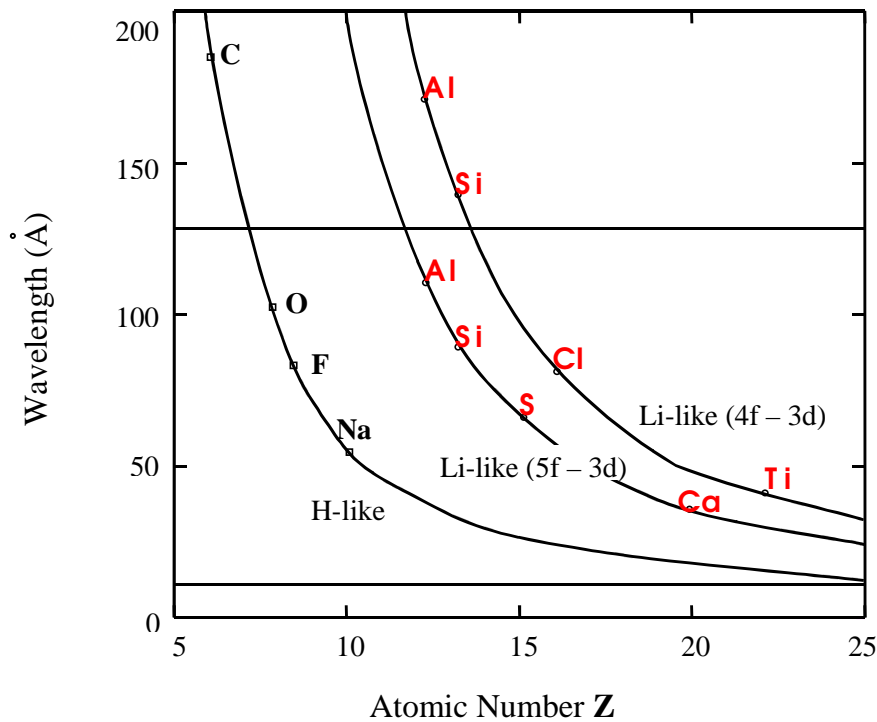
Fig. 1.3 - Schema amplificatore-oscillatore

La “dinamica” di un tale sistema può essere sintetizzata come segue. Nella prima parte il fascio di elettroni subisce, per effetto dell’interazione FEL, una opportuna modulazione di energia, viene successivamente estratto per essere iniettato nella seconda sezione, i cui parametri dell’ondulatore sono scelti in maniera da garantire emissione su una armonica della radiazione di operazione dell’oscillatore. Per effetto della modulazione in energia, che si trasforma nella sezione dispersiva in modulazione di densità, si ha fin dalla parte iniziale della sezione di amplificazione una emissione di radiazione coerente, che permette di ridurre le dimensioni del sistema ed ottenere una maggiore purezza spettrale in uscita.

Bisogna sottolineare che, sebbene interessanti, schemi di questo tipo sono limitati a regioni di lunghezza d’onda non inferiore alle decine di nm.

Ritornando al grafico di Fig.1.1, bisogna sottolineare che esso non contiene le brillanze ottenute con sistemi laser a plasma, i cui valori di picco sono dell’ordine di  $10^{26}$  (uc) (le brillanze maggiori sono state ottenute con il laser a yttrio (Ne-like) operante a 95eV e sono pari a  $5 \times 10^{26}$  (uc)).

Nella figura 1.4 sono riportate le lunghezze d'onda ottenute sperimentalmente e estrapolate teoricamente per alcuni sistemi Laser di tipo H-like e Li-like con sopra imposte le regioni di operazione della sorgente FEL SASE relativa alla presente proposta.



**Fig. 1.4 - Lunghezze d'onda ottenute con sistemi laser convenzionali. La zona spettrale compresa tra le due rette orizzontali rappresenta la regione copribile con la sorgente FEL SASE della presente proposta**

Come commento alla Fig. 1.4 va notato che

i) la sorgente FEL SASE (se non si tiene conto delle armoniche) copre dai 100 Å fino ai 15 Å (ovvero dai 130 eV fino a 850 eV), una ampia fetta delle regioni copribili con sorgenti di tipo laser plasma

ii) l'estrapolazione di tali sorgenti a energie di fotoni intorno al keV (ovvero lunghezze d'onda dell'ordine delle decine di Å) appare particolarmente difficile specialmente in relazione alle richieste di prestazione del laser di pompa

iii) le potenze di picco e medie ottenibili con tali sistemi non sono nemmeno lontanamente comparabili a quelle ottenibili nel caso SASE, si noti ad esempio che la potenza media più alta ottenuta con un laser ad Argon (Ne-like a 26 eV, intorno ai 200 Å) è di circa 3mW, contro le decine di W ottenibili con sorgenti FEL SASE.

In conclusione è ragionevole affermare che uno sforzo diretto verso la costruzione di un sistema FEL-SASE va verso la realizzazione di una sorgente di radiazione flessibile e unica, in grado di soddisfare diverse esigenze di ricerca, applicative ed industriali.

Le considerazioni preliminari svolte fino ad ora costituiscono il punto di partenza per quelle relative alle applicazioni.

## 2. MOTIVAZIONI SCIENTIFICHE

### 2.1 Introduzione

I raggi X sono utilizzati attualmente in una vasta gamma di campi, dalla ricerca fondamentale ed applicata, alla diagnosi radiologica e all'analisi di prodotti industriali. La sorgente SPARX porterà la maggior parte delle applicazioni attuali a nuovi livelli d'eccellenza e verso nuove direzioni. Le discipline implicate saranno molteplici e diverse fra loro. Si potranno utilizzare tecniche innovative basate sulla formazione d'immagini a raggi X, studi in funzione del tempo, tanto nella scienza dei materiali che in biologia e medicina, l'estensione di molteplici applicazioni di ottica non lineare a nuove regioni spettrali, nuove direzioni nella microscopia a raggi X e nuove metodologie nel campo della cristallografia delle proteine e della genomica strutturale, che si trova in uno stato di rapidissima crescita.

La sorgente SPARX consentirà inoltre d'inviare per la prima volta una concentrazione enorme di energia su piccole aree di sistemi condensati e non e biologici. Questo renderà possibile la scoperta di fenomeni ancora sconosciuti, che non possono essere previsti tramite un'estrapolazione di quanto già noto. Si possono specificamente intravedere una serie di risultati nell'ambito della fotochimica, che potrebbero avere interessanti ricadute industriali.

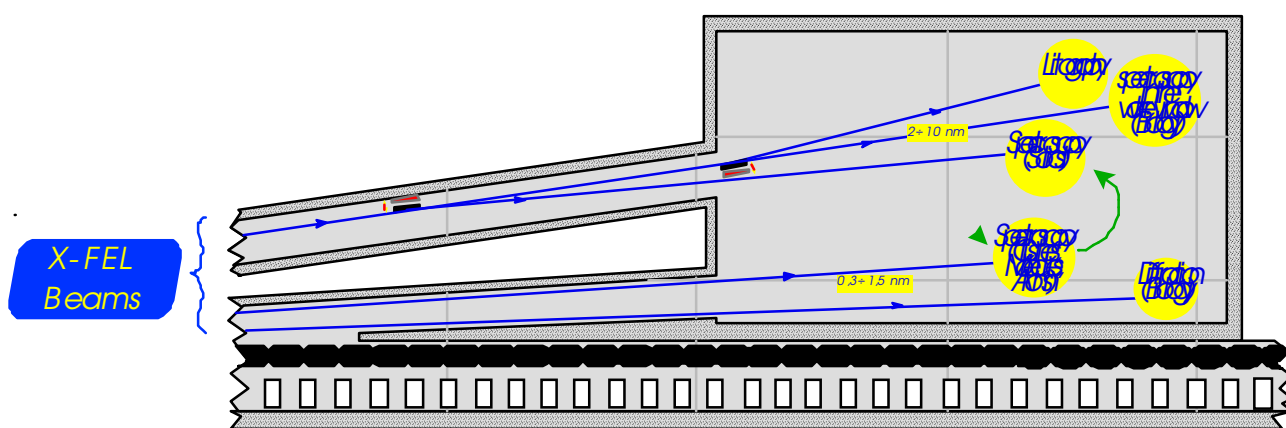
La sorgente SPARX emetterà raggi X con caratteristiche assolutamente senza precedenti, fra le quali si distinguono due parametri particolarmente importanti: la brillantezza di picco, circa  $10^{32}$  (in unità convenzionali (u. c.), fotoni per s, per  $\text{mrad}^2$ , per  $\text{mm}^2$ , su una banda passante relativa dello 0,1%), e la durata di ciascun impulso, circa 100 femtosecondi. Nella definizione del progetto finale saranno studiate possibili tecniche sperimentali per ottenere impulsi ancora più brevi, di pochi femtosecondi.

Per quanto concerne la regione spettrale, un acceleratore lineare di elettroni, con energia d'estrazione di 2.5 GeV, alimenterà due ondulatori che emetteranno radiazione X, lungo due linee di luce separate, con prima armonica a 10nm ed 1.5nm, rispettivamente. L'utilizzo di armoniche superiori (terza e quinta) permetterà un'ampia accordabilità dell'energia tra 10nm e 2nm, che comprende la finestra dell'acqua (2-5nm, di estremo interesse in campo biologico), e tra 1.5nm e 0.3nm.

È bene notare che tale radiazione con lunghezza d'onda di 0.3 nm avrà una brillantezza di picco di circa  $10^{27}$  u.c. (circa cinque ordini di grandezza superiore alle sorgenti di terza generazione), e permetterà di applicare le tecniche diffrattive con radiazione coerente sia ai materiali inorganici che ai materiali biologici, con particolare riguardo alla possibilità di effettuare cristallografia di

macromolecole con un singolo impulso. Un'altra eccezionale prestazione di SPARX sarà quella di fornire radiazione spontanea fino all'Ångstrom, con brillantezza ancora alcuni ordini di grandezza maggiore delle sorgenti di terza generazione, che la rendono unica soprattutto considerando la sua struttura temporale che fornisce la possibilità di investigare la dinamica dei sistemi.

Nella fase di realizzazione iniziale, e con la disponibilità finanziaria prevista dal bando, la prima linea, a più bassa lunghezza d'onda, alimenterà due stazioni sperimentali, una per misure diffrattometriche e l'altra per misure spettroscopiche (anche con risoluzione temporale) sia su gas, molecole o clusters, che su solidi. La seconda linea, a maggiore lunghezza d'onda, alimenterà una camera sperimentale per spettromicroscopia su materiali biologici ed una stazione per misure spettroscopiche (anche con risoluzione temporale) su sistemi in qualsiasi stato di aggregazione. Le due camere per misure spettroscopiche saranno finalizzate anch'esse ad indagini su sistemi in qualunque stato di aggregazione, ed in una prima fase saranno intercambiabili sulle due linee. Tale configurazione minima sarà estendibile ad un numero ulteriore di stazioni sperimentali qualora si presenti la possibilità di nuovi finanziamenti, anche provenienti da partners esterni. Uno schema possibile di realizzazione è riportato nella figura 2.1 che segue. I particolari realizzativi delle stazioni sperimentali saranno oggetto di studio durante il primo anno del progetto e terranno conto degli esperimenti da realizzare e degli interessi degli utilizzatori.



**Fig. 2.1 Schema delle stazioni sperimentali del laboratorio SPARX**

Bisogna sottolineare come lo sviluppo di questo nuovo tipo di sorgenti rappresenti una sfida tecnologica avanzatissima, la cui complicazione cresce quanto più l'energia si sposta verso i raggi X duri. La sorgente SASE con lunghezza d'onda minima è quella attualmente realizzata presso il laboratorio DESY di Amburgo nella regione dell'ultravioletto da vuoto. Il progetto SPARX, con l'obiettivo di realizzare una sorgente ad 1.5 nm, rappresenta uno step successivo, in un intervallo di lunghezze d'onda di estremo interesse scientifico, ed evolutivo verso il più ambizioso traguardo che è il raggiungimento di radiazione coerente di lunghezza d'onda dell'Ångstrom.

I parametri della sorgente SPARX, presentati in dettaglio nelle sezioni successive, sono naturalmente suscettibili di una revisione in sede di pianificazione avanzata, per rispondere alle esigenze di nuovi utenti e di nuove discipline (nonché ad eventuali miglioramenti tecnologici). L'utilizzo degli impulsi ultrabrevi ed ultrabrillanti, nelle regioni spettrali sopra menzionate, troverà una grandissima varietà di applicazioni in una vasta gamma di discipline scientifiche e tecnologiche.

È naturalmente impossibile delineare in questa sede, sia pur brevemente, tutti i possibili usi della nuova sorgente. Inoltre, l'esperienza di tre decenni di ricerca mediante luce di sincrotrone insegna che le applicazioni effettive di una sorgente innovativa di raggi X risultano di norma di gran lunga più vaste di quelle previste in sede di progetto. Le caratteristiche uniche della nuova sorgente, relativamente alla brillantezza di picco (fino a  $10^{33}$  u.c.), collimazione, coerenza e struttura temporale (durata degli impulsi dell'ordine di 100 fs), alta brillantezza media ( $>10^{25}$  u.c.), possono essere sfruttate in una serie di campi di indagine, che qui di seguito riportiamo insieme ad alcuni esperimenti significativi.

## 2.2 Studi strutturali tramite la radiazione dell'X-FEL

### 2.2.1 Sistemi biologici

Oggi il genoma completo di alcuni organismi, dai batteri all'uomo, è già disponibile ed il sequenziamento del materiale genetico di altre specie è attualmente in corso [1]. Il genoma di un singolo organismo codifica un numero molto grande di catene polipeptidiche, da circa 1000 in un semplice batterio, ad un numero compreso tra 30000 e 70000 nell'uomo. Al contrario, la struttura tridimensionale è nota solo per un sottoinsieme molto limitato delle proteine codificate dal genoma. È importante sottolineare che la funzione di una proteina è strettamente legata alla sua struttura tridimensionale e non semplicemente alla sua sequenza aminoacidica: esistono proteine che pur avendo una omologia di sequenza molto limitata, presentano lo stesso "folding" ed hanno una funzione simile. Questa è la ragione per cui la nuova frontiera della ricerca in biologia molecolare è la "proteomica", ed in particolare la proteomica strutturale, cioè la caratterizzazione strutturale e funzionale di tutti i prodotti del genoma.

La determinazione della struttura tridimensionale di una proteina usando la diffrazione di raggi X è ancora un lavoro piuttosto lungo, nonostante l'enorme progresso tecnologico degli ultimi anni. La principale difficoltà di tale tecnica è costituita dalla cristallizzazione delle macromolecole, che è ancora più vicina all'arte che alla scienza. Inoltre, le proteine di membrana, che si stimano rappresentare circa un terzo di un genoma, sono difficilmente cristallizzabili e solo per poche di loro la struttura cristallografica è conosciuta. A ciò si aggiunga che le proteine all'interno della cellula non si comportano come molecole singole in soluzione, ma sono spesso organizzate in complessi macromolecolari: questa organizzazione sopramolecolare permette il tipo di azioni concertate che sono necessarie per lo svolgimento dei complicati processi che avvengono negli organismi viventi.

Inoltre i complessi macromolecolari cristallizzano più difficilmente rispetto alle proteine singole. D'altra parte l'NMR, l'altra tecnica che permette la determinazione della struttura 3D, non ha bisogno di cristalli ma è fortemente limitata dalle dimensioni del campione, cioè permette di studiare solo proteine più piccole di circa 30 kDa.

La cristallografia tradizionale a raggi X ha avuto come obiettivo la raccolta dei dati di diffrazione in corrispondenza dei nodi del reticolo reciproco (cioè la misura dell'intensità di *riflessi ad indici interi*), giacché il diffrattogramma di un cristallo ideale di dimensioni mille volte più grande del periodo della cella unitaria presenta un'intensità praticamente nulla tra i picchi di Bragg.

D'altro canto, un esperimento di diffrazione relativo ad un'unica cella produce uno spettro continuo, di solito descritto come *spettro di diffusione*. I nanocristalli, invece, possono presentare caratteristiche intermedie: picchi di Bragg concentrati sui nodi del reticolo reciproco, e picchi non-

Bragg localizzati tra loro, il cui numero dipende dalle dimensioni del cristallo. La seconda classe dei picchi può essere caratterizzata come *riflessi ad indici frazionari*. Analogamente, lo spettro continuo risultante da un esperimento di diffrazione da una molecola isolata può essere campionato finemente, ed interpretato anche in questo caso in termini di riflessi ad indici frazionari. La cristallografia a Raggi X, tradizionalmente, trascurava i riflessi ad indici frazionari a causa delle difficoltà sperimentali connesse alla diffrazione da nanocristalli e/o da singole molecole.

In tutti e tre i casi precedenti, macrocristalli, nanocristalli e molecole isolate, gli esperimenti di diffrazione non forniscono alcuna informazione sulla fase, poiché la misura riguarda solo l'intensità della radiazione diffratta. Questo è il *problema della fase*, la cui soluzione è stata ottenuta solo per molecole piccole. La soluzione nel caso di cristalli macromolecolari produrrebbe enormi benefici in biologia, chimica strutturale e nella scienza dei materiali.

Le proprietà statistiche dei riflessi a indici frazionari e le loro relazioni con i riflessi a indice intero sono stati studiati da Giacovazzo, Siliqi et al. [2-8]. Più recentemente il problema è stato trattato sotto l'aspetto del sovracampionamento dello spettro di diffrazione [9-12]. In pratica lo spettro di diffrazione è "oversampled" con una spaziatura più piccola della distanza di Nyquist, creando così una regione di "non-densità" che circonda la densità elettronica del campione. È stato mostrato che tale regione di non-densità può essere utilizzata per recuperare l'informazione di fase.

Inoltre, le presenti tecniche di diffrazione a Raggi X non permettono (in molti casi), una controparte sperimentale ai risultati teorici sopra descritti. Infatti le intensità dei riflessi a indici frazionari sono molto più piccole delle intensità dei picchi di Bragg e la loro misura sperimentale richiede alte dosi di Raggi X, con la certezza di provocare seri danni del campione.

Tale problema potrebbe essere risolto utilizzando l'impulso ultra-breve della sorgente SPARX: simulazioni teoriche hanno infatti dimostrato che una macromolecola può sopportare una intensità di raggi X di circa  $4 \times 10^6$  fotoni/Å<sup>2</sup> per un impulso di durata confrontabile a quello dell'X-FEL [13]. Ogni misura effettuata su una molecola singola origina una proiezione 2D della sua densità d'energia. Per ricostruire una immagine 3D, devono essere combinate diverse proiezioni 2D, ognuna collezionata con una orientazione casuale [16]. Quindi la combinazione dell'impulso ultra-breve ed intenso dell'X-FEL unito con il sovracampionamento, dovrebbe rendere possibile la diretta determinazione della struttura 3D di una singola macromolecola o di un complesso macromolecolare.

Poiché studi cristallografici su macromolecole biologiche richiedono risoluzione atomica, la quinta armonica dell'X-FEL a 4 keV (corrispondente ad una massima risoluzione teorica dello spettro di 1.5Å) permette, in principio, la determinazione della struttura 3D nei dettagli atomici. Inoltre, anche la componente continua della radiazione, avente un'intensità di circa 3-4 ordini di



grandezza superiore a quella prodotta dai sincrotroni di terza generazione, potrebbe essere usata per effettuare tali esperimenti.

## **Bibliografia**

1. Venter J. C. et al., The Sequence of the Human Genome, *Science*, 1304-1351 (2001)
2. C. Giacobazzo & D. Siliqi *Acta Cryst. A* **54**, 957 (1998)
3. C. Giacobazzo, D. Siliqi, B. Carrozzini, A. Gagliardi & A.A. Moliterni *Acta Cryst. A* **55**, 314 (1999)
4. C. Giacobazzo, D. Siliqi, A. Altomare, G.L. Cascarano, R.Rizzi & R. Spagna *Acta Cryst. A* **55**, 322 (1999)
5. C. Giacobazzo, D. Siliqi & C. Fernandez-Castano *Acta Cryst. A* **55**, 512 (1999)
6. C. Giacobazzo, D. Siliqi, C. Fernandez-Castano & G. Comunale *Acta Cryst. A* **55**, 525 (1999)
7. C. Giacobazzo, D. Siliqi, C. Fernandez-Castano, G.L. Cascarano & B. Carrozzini *Acta Cryst. A* **55**, 984 (1999)
8. C. Giacobazzo, D. Siliqi, C. Fernandez-Castano & G. Comunale *Crystallographic Association* pp. 65-72 (2001)
9. Miao and Sayre *Acta Cryst. A* **56**, 596 (2000)
10. Miao, Sayre & Chapman *J. Opt. Soc. Am. A* **15**, 1662 (1998)
11. Sayre, Chapman & Miao *Acta Cryst. A* **54**, 232 (1998)
12. Miao, Charalambous, Kirz & Sayre *Nature (London)*, **400**, 342
13. Neutze, R., Wouts, R., Spoel, D., Weckert, E. and Hajdu, J., *Nature (London)* **406**, 752 (2000)
14. Hajdou et al. *AIP Conf. Proc.* **477**, 377 (1999)
15. Doniach, S. *J. Synchrotron Radiation* 116-120 (2000)
16. Mia, JW, Hodgson, KO, Sayre-D, *PNAS*, 2001, 98, 6641-6645.

### **2.2.2 Diffrazione di raggi-X risolta temporalmente**

#### Introduzione: Esperimenti pump-probe

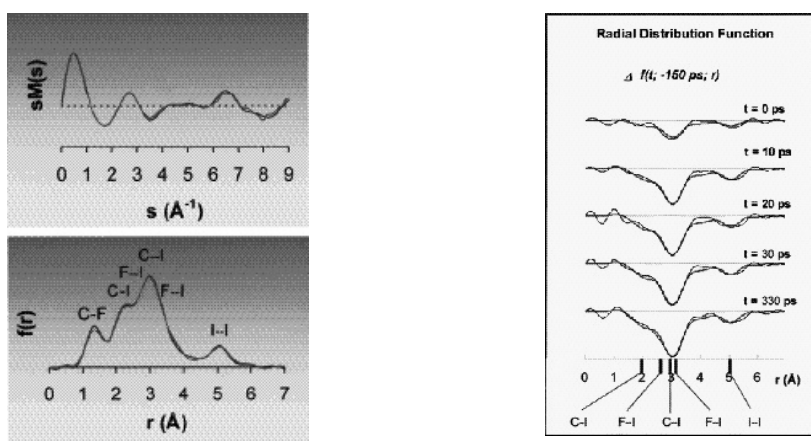
Nell'ultimo ventennio, è stata dedicata una gran mole di lavoro allo studio dei sistemi in tempo reale. Reazioni chimiche risolte temporalmente [1], dinamiche molecolari [2], transizioni di fase [3] e propagazione delle eccitazioni elementari [4], sono state affrontate in maniera radicalmente diversa rispetto al passato. I metodi convenzionali per investigare gli aspetti energetici di tali fenomeni erano fondamentalmente basati su misure di tipo spettroscopico, consistenti

nell'analisi della risposta (tanto spontanea, quanto indotta da una stimolazione appropriata) nel dominio delle frequenze dei campioni. Tuttavia, la spettroscopia (non risolta temporalmente) rappresenta una misura mediata sull'ensemble statistico delle proprietà energetiche e l'informazione che se ne ottiene è limitata alle grandezze direttamente associate a tali proprietà. Al contrario, un metodo stroboscopico che consista nell'irradiare il sistema con una sequenza di lampi molto più brevi del suo tempo caratteristico di transizione, potrebbe fornire un'analisi più approfondita dei meccanismi di trasformazione [5]. In questo modo le transizioni elementari dei campioni potrebbero essere descritte come una serie di "istantanee", scomponendo cioè il moto continuo in una serie di fotogrammi. Per raggiungere quest'obiettivo, la risoluzione temporale richiesta è tra il piko ed il femto secondo, in dipendenza del particolare sistema in studio. Infatti, fenomeni chimico-fisici veloci, quali la fotodissociazione di aggregati, la fusione di solidi cristallini, le vibrazioni molecolari [5] etc., avvengono sulla scala dei femtosecondi e, per poter seguire la loro dinamica, è richiesta una risoluzione temporale paragonabile. Tentare di descrivere questi fenomeni servendosi di sonde di durata superiore permette di ottenere unicamente informazioni medie sugli stadi di avanzamento della trasformazione del campione nell'intervallo di tempo in cui viene irradiato. È per questo motivo che alcuni processi erano ritenuti assai più complessi di quanto non fossero realmente [5], dal momento che la complessità nasceva dal tentativo di interpretare come singolo evento complesso ciò che in realtà era una sequenza di molti processi elementari.

Lo sviluppo della tecnologia dei laser pulsati ha permesso di raggiungere la risoluzione temporale necessaria e di intraprendere una classe di esperimenti cui è stato dato il nome di 'femtochimica', fornendo una nuova e più profonda visione del mondo delle trasformazioni microscopiche [6]. Tale scopo è stato conseguito servendosi di tecniche di "pump-probe", che consistono nello stimolare il campione con coppie di impulsi laser, il secondo dei quali viene progressivamente ritardato di un tempo  $\tau$  rispetto al primo. Una descrizione più generica del metodo può essere data in termini di perturbazione del campione per opera di uno stimolo (pump) e di successiva lettura dell'effetto prodotto da parte di una sonda opportuna (probe). Lo stimolo e la sonda possono avere la stessa natura, come nel caso di un singolo impulso laser diviso in due componenti, oppure natura differente ( impulso laser- pacchetto di elettroni, impulsi laser di energie diverse). In ogni caso, lo stimolo dispone il campione in particolari condizioni iniziali (tempo zero di riferimento) e la sonda misura il valore di una particolare grandezza associata al sistema dopo il tempo  $\tau$ . Effettuando una scansione della variabile  $\tau$ , si ottiene l'evoluzione temporale del campione. Questa tecnica è un potente mezzo per investigare, virtualmente, tutti i processi chimici sensibili alla radiazione IR, visibile ed UV. Tuttavia l'uso di impulsi di tali radiazioni garantisce un'elevata risoluzione temporale, ma non un'alta risoluzione spaziale.

Una tecnica di pump-probe basata sulla diffrazione fornirebbe la connessione diretta tra la sequenza di spettri di diffrazione risolti temporalmente e gli arrangiamenti “istantanei” degli atomi campione. Tentativi in questo senso sono stati effettuati servendosi di radiazione di sincrotrone di terza generazione [7], di sorgenti di raggi-X da laboratorio pulsate [8] e di elettroni usati come sonda al posto della radiazione.

Ciascuno di questi esperimenti ha fornito nuove indicazioni su particolari sistemi e, nel complesso, possono essere considerati dei test fondamentali per lo sviluppo di un pump-probe basato sulla diffrazione. Tuttavia, ognuno presenta delle limitazioni intrinseche che non possono essere superate semplicemente migliorando le condizioni sperimentali.



**Fig. 2.2. Fattore di struttura e funzione di distribuzione radiale della molecola  $\text{C}_2\text{F}_4\text{I}_2$  (a) ed evoluzione temporale di quest'ultima (b) [5].**

Un impulso di raggi-X di sincrotrone di terza generazione (ad es. ESRF) ha una durata (100 ps) di circa tre o quattro ordini di grandezza maggiore dei tempi caratteristici dei processi veloci (10-100 fs) menzionati, mentre le sorgenti di laboratorio hanno una brillantezza troppo bassa per ottenere dei segnali decifrabili in un tempo d'acquisizione ragionevolmente breve, spesso anche in misure di campioni cristallini [10].

Tutto ciò restringe il campo di applicazione ad una categoria limitata di fenomeni (e le reazioni chimiche non sono tra loro).

La diffrazione elettronica ultraveloce [11] è risultata la tecnica migliore a questo scopo ed, effettivamente, sono stati condotti studi di fotodissociazione in tempo reale che hanno chiarito le dinamiche delle reazioni a partire dalla molecola reagente fino ai frammenti dissociati, passando attraverso tutti gli stati di transizione metastabili intermedi (vedi fig. 2.2). Infatti, nonostante gli elettroni non soddisfino l'approssimazione di Born (interazione debole tra sonda e campione), il che comporta necessariamente una distorsione degli spettri di diffrazione elettronica, questa risulta

essere una metodica competitiva con la diffrazione di raggi-X qualora si studino molecole isolate. Viceversa, quando si debba studiare materia condensata, la diffrazione elettronica può essere usata solo come tecnica di superficie ed inoltre la risoluzione temporale (benché attualmente sia ~10 ps) è ancora troppo bassa per lo studio delle dinamiche elementari.

Per questi motivi la diffrazione di raggi-x si propone come una metodologia unica per lo studio delle variazioni microscopiche rapide, spontanee o indotte, coerenti o incoerenti, dei sistemi.

L'applicazione della tecnica pump-probe è di interesse sia fisico che chimico. Può essere utilizzata tanto per misurare gli spostamenti degli elementi che costituiscono il campione quanto per seguire la loro trasformazione chimica. Un impulso X-FEL è, per tanti aspetti, una sonda ideale per congelare in un singolo diffrattogramma la struttura di un campione precedentemente perturbato da un impulso laser IR, visibile, UV, o un altro impulso X-FEL. A seconda del tipo di perturbazione indotta dallo stimolo sul sistema, ad esempio sui suoi gradi di libertà rotazionali, vibrazionali, elettronici, sui moti singoli o collettivi, si potrà seguire una diversa dinamica di trasformazione.

## **Bibliografia**

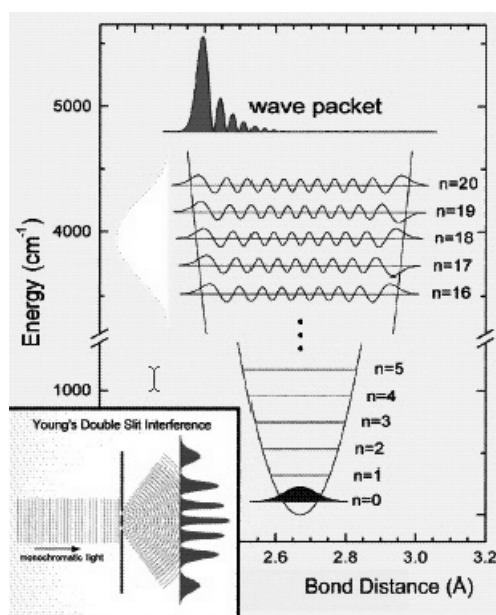
1. A. H. Zewail, *J. Phys. Chem. (Centennial Issue)* **100**, 12701 (1996)
2. P. M. Felker and A. H. Zewail, *Adv. Chem. Phys.* **70**, 265 (1988)
3. J. W.M. Frenken and J.F. van der Veen, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 134 (1985)
4. P. A. Rigg and Y. M. Gupta, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1655 (1998)
5. A. H. Zewail, *J. Phys. Chem. A* **104**, 5660 (2000)
6. A. H. Zewail, *J. Phys. Chem.* **97**, 12427 (1993)
7. T. D'Almeyda et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 330 (2000)
8. Rose-Petruck C. et al., *Nature* **398**, 310 (1999)
9. J.C. Williamson et al., *Nature*, **386**, 159 (1997)
10. A. Rousse et al., *Review of Mod. Phys.* **73**, 17 (2001)
11. J. Cao et al., *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **96**, 338 (1999)

## *Femtofisica: test diretti della meccanica quantistica*

Benché la meccanica quantistica sia la teoria fisica che presenta il miglior accordo con i dati sperimentali, la correttezza della descrizione che fornisce del movimento di oggetti microscopici non è stata ancora direttamente verificata.

Per introdurre l'argomento si può citare, a titolo d'esempio, la rappresentazione di Pauli della risonanza tra diverse strutture elettroniche. Essa era comunemente considerata come un modello per rappresentare alcuni legami chimici e, prima degli esperimenti di pump-probe, non vi era evidenza

sperimentale per affermare che questo fosse il reale comportamento degli elettroni di legame [1]. Allo stesso modo, nell'approssimazione armonica del potenziale, una molecola che si trovi in uno autostato vibrazionale non dovrebbe muoversi e solamente quando la molecola venisse eccitata in una sovrapposizione di diversi autostati (stato misto), potrebbe formarsi un pacchetto d'onda non stazionario e si dovrebbe poter constatare un moto reale (vedi fig. 2.3).



**Fig. 2.3. Diagramma dell'eccitazione dell'oscillatore quantistico ad uno stato di sovrapposizione di vari modi vibrazionali e del pacchetto d'onda risultante. Nel riquadro è mostrata l'analogia con l'ottica classica [1]**

Per osservare sperimentalmente il moto, si può preparare un insieme di molecole in una condizione coerente (cioè in maniera tale che condividano la stessa funzione d'onda), in cui ciascuna molecola è eccitata simultaneamente allo stesso stato misto [2]. Un sistema di questo tipo, può essere descritto collettivamente, come se tutte le molecole fossero unite assieme. Anche questo fenomeno è stato realmente osservato ma, come nel caso precedente, il movimento atteso è stato confermato indirettamente attraverso l'analisi di dati di natura spettroscopica piuttosto che direttamente tramite l'impiego di una sonda sensibile alla posizione.

Un impulso X-FEL possiede un'intensità ed una risoluzione temporale tali da fornire spettri di diffrazione e da cui si possa estrarre la trasformata di Fourier della correlazione istantanea delle posizioni atomiche intramolecolari, ovvero delle distanze di legame.

Utilizzando laser visibili, è stato possibile studiare il meccanismo della redistribuzione dell'energia da un singolo modo eccitato agli altri modi normali di vibrazione, confermando che la redistribuzione avviene seguendo il modello classico di pendoli collegati da molle cedevoli [3] (vedi fig. 2.4). Una volta che un modo viene attivato, l'energia è distribuita agli altri; dopodiché torna al modo originale e prosegue periodicamente secondo questa alternanza.

In effetti, i modi vibrazionali di un oscillatore armonico non interagiscono ma, a causa della componente anarmonica sempre presente in misura maggiore o minore, un trasferimento d'energia è comunque atteso.

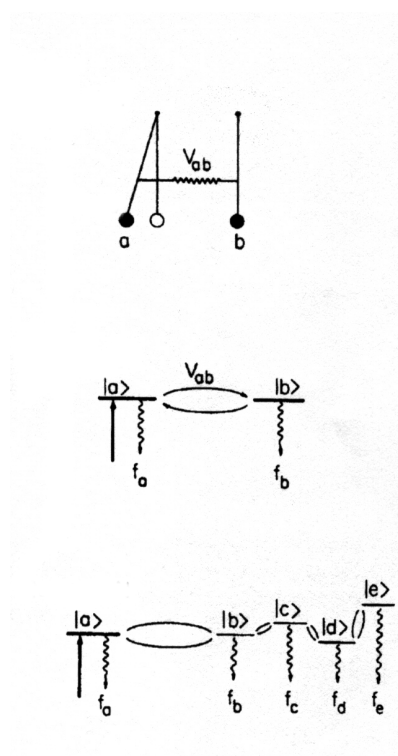


Fig. 2.4 Modelli classici e quantistici di oscillatori accoppiati [1]

Dati spettroscopici al femtosecondo confermano che anche questo meccanismo è reale e che i moti rotazionali o altri effetti spuri non sono in grado di eliminare in tempi brevi la coerenza di fase che consente il trasferimento periodico d'energia [4].

Misure di diffrazione al femtosecondo sarebbero in grado di fornire un'immagine dei complessi moti molecolari, scomponendoli in una sequenza di processi elementari, senza dover ricorrere a modelli interpretativi come nel caso spettroscopico.

Anche le rotazioni coerenti potrebbero essere visualizzate con la stessa tecnica consentendo così lo studio delle perturbazioni interne (forze di Coriolis) ed esterne (collisioni), che infine producono la scomparsa di tali effetti coerenti [5].

### Bibliografia

1. A. H. Zewail, *J. Phys. Chem. A* **104**, 5660 (2000)
2. C. Wittig, *Dynamics of ground state in molecular reactions*, E.R. Bernstein Ed., Oxford University Press, New York (1996)
3. W. R. Lambert et al., *J. Chem. Phys.* **81**, 2209 (1984)

4. M Dantus et al., *Nature* **343**, 737 (1990)

5. M. Gruebele et al., *J. Chem. Phys* **98**, 883 (1993)

### Femtochimica: Studio in tempo reale delle reazioni chimiche

Studi pump-probe sono stati condotti sulla dinamica delle trasformazioni chimiche servendosi di laser ottici. Il modello chimico classico che descrive una reazione a partire dai reagenti per arrivare ai prodotti attraverso uno stato di transizione (“complesso attivato”) ha avuto piena conferma [1]. Lo stato di transizione, storicamente introdotto come utile mezzo per rappresentare lo stadio della reazione in cui i componenti non possono essere identificati né con i reagenti e né con i prodotti, si è dimostrato un vero stato della materia. Infatti, questo intermedio possiede specifiche proprietà e caratteristiche e, nonostante il breve tempo di vita, deve essere considerato un composto indipendente. Il modo in cui l’energia viene trasferita dai reagenti al complesso attivato e, da esso, ai prodotti (assieme alle loro scale temporali), è stato studiato spettroscopicamente con tecniche ottiche di pump-probe [2]. Grazie alla preparazione coerente degli aggregati molecolari, i risultati possono essere espressi in termini di movimento di un singolo pacchetto d’onda nello spazio avente per variabili il tempo e le coordinate di reazione, rivelando così le modalità di frammentazione e ricombinazione.

Ottenere una descrizione del pacchetto d’onda tramite la diffrazione al femtosecondo chiarirebbe le modalità del movimento nello spazio reale piuttosto che nello spazio semplificato delle coordinate empiriche di reazione.

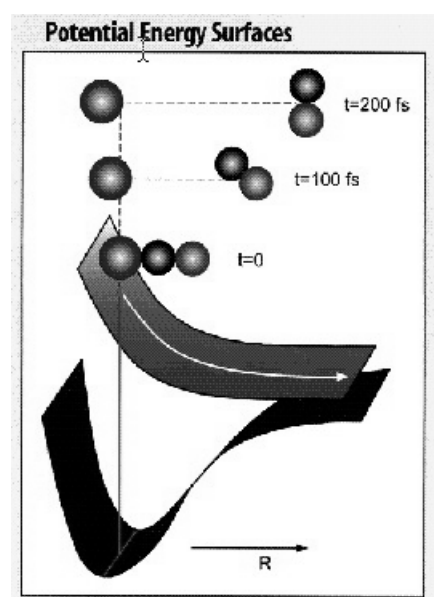


Fig. 2.5 Schema della fotodissociazione di una molecola tri-atomica [1]

Un'utile applicazione potrebbe essere lo studio dell'evoluzione temporale di reazioni chimiche indotte da laser. Il modello più semplice di un simile processo è la rottura del legame di una molecola biatomica [3]. Un impulso laser visibile può essere utilizzato come stimolo per eccitare un elettrone di valenza in uno stato repulsivo antilegante.

Il pacchetto d'onda molecolare seguirà il profilo energetico monotonamente decrescente, allargandosi ed allontanandosi sempre di più dall'origine, cammino che corrisponde alla progressiva separazione degli atomi.

La separazione potrebbe essere monitorata con la diffrazione di X-FEL, mostrando se l'ipotesi di questo meccanismo sia realistica oppure se risulti complicata dall'attraversamento di diverse superfici d'energia potenziale (vedi fig. 2.5).

Infatti, bisogna attendersi l'esistenza di molte superfici per molecole composte da diversi atomi ed il metodo di diffrazione pump-probe offrirebbe lo strumento per determinare le possibili traiettorie del pacchetto d'onda che potrebbe passare da una superficie di potenziale ad un'altra nei punti in cui esse si intersecano. L'osservazione sarebbe resa possibile dall'aumento della velocità di gruppo del pacchetto d'onda che dipende dalla pendenza della particolare superficie di potenziale lungo la quale si trova a scorrere [4]. La sequenza delle posizioni relative assunte dagli atomi fornirebbe un mezzo per studiare le caratteristiche di queste superfici.

Un'altra tipologia d'informazione chimica potrebbe essere ottenuta seguendo reazioni chimiche guidate dal laser (per esempio, l'aumento selettivo del tasso di produzione di uno dei possibili prodotti finali) con la diffrazione X-FEL, in termini di distanze e velocità degli atomi dei reagenti.

## **Bibliografia**

1. S. Pedersen et al., *Science* **226**, 1359 (1994)
2. S. De Feyter, *Chem Phys. Lett.* **303** 249 (1999)
3. T. S. Rose, *J. Chem. Phys.* **88**, 6672 (1988)
4. P. Cong et al., *J. Phys. Chem.* **100**, 7832 (1996)

## Transizioni di fase

Un impulso X-FEL ultra brillante può produrre un incremento rapidissimo di temperatura nel campione e quindi la sua fusione. Gli elettroni che assorbono la radiazione sono promossi a livelli energetici superiori e, durante la successiva diseccitazione, trasferiscono l'energia in eccesso al reticolo cristallino [1]. Due sono i fenomeni di interesse che potrebbero essere studiati mediante la tecnica di pump-probe diffrattometrico.



Il primo è un processo, alternativo a quello appena descritto, che potrebbe provocare la distruzione del cristallo prima che sia raggiunta la termalizzazione, noto come “fusione elettronica”. È equivalente alla “Esplosione Coulombiana” di sistemi di materia soffice (vedi par. 2.2.1) e si verifica quando una porzione critica di elettroni di legame transisce alla banda di conduzione. Benché vi siano indizi sperimentali dell’insorgenza di quest’effetto [2], le sue caratteristiche sono sconosciute, in quanto l’ordine temporale su cui avvengono è inferiore al ps, e solamente impulsi al femtosecondo costituirebbero uno strumento adeguato per questo studio.

Una seconda classe di fenomeni che possono essere studiati in tempo reale è l’evoluzione della struttura del campione, in caso di fusione termica, prima che si sia raggiunta la configurazione liquida d’equilibrio. L’equilibrio termodinamico per un insieme canonico corrisponde ad un minimo assoluto dell’energia libera di Gibbs. Essa contiene un termine di energia interna, che tiene in considerazione le interazioni tra le particelle, ed un termine entropico (pesato con la temperatura del sistema), che è correlato al grado di disordine. Se i potenziali interparticellari sono a corto raggio come nella maggioranza dei sistemi fisici, il termine di energia interna è locale ed è sensibile solo all’organizzazione dei primi vicini. Al contrario, il termine entropico è una grandezza collettiva e dipende dai gradi di libertà di ciascuna particella. Quindi le scale temporali di variazione di questi contributi sono diverse e, durante il processo di convergenza verso l’equilibrio finale, bisogna aspettarsi la presenza di vari stati metastabili di breve durata, che corrispondono a minimi relativi dell’energia interna.

## **Bibliografia**

1. B. C. Larson et al., *Phys. Rev. Lett.* **48**, 337 (1982)
2. C. Rischel et al., *Nature* **390**, 490 (1997)

### Altri studi diffrattometrici in tempo reale

La tecnica pump-probe può anche essere interpretata in maniera più estesa. L’impulso di probe può osservare sia l’effetto ritardato dell’azione diretta dello stimolo, sia le conseguenze indirette dell’interazione dello stimolo stesso con il sistema.

Un esempio del secondo caso è la generazione di onde d’urto estremamente intense tramite impulsi X-FEL che producano l’ablazione della superficie del campione irradiato. L’onda di compressione si propagherà attraverso il campione inducendo variazioni strutturali che potranno essere rilevate da una sonda ritardata [1]. Servendosi di questo metodo, si potranno investigare riarrangiamenti dei sistemi vetrosi e transizioni di fase di sistemi cristallini indotti dalla pressione. Altresì, come descritto nel paragrafo precedente, usando un impulso laser visibile si possono

raggiungere alte temperature e, quindi, osservare il comportamento di sistemi sottoposti a condizioni estreme. L'esplorazione di regioni del diagramma di fase non accessibili fino ad oggi fornirebbe informazioni di interesse geologico sull'equazione di stato della materia.

In modo analogo si potrebbero condurre studi strutturali di ricostruzione di superfici in tempo reale. È ben noto che le proprietà superficiali dipendono dalla loro struttura e che i tempi delle transizioni di fase degli atomi di superficie sono dell'ordine dei femtosecondi, così che finora non è stato possibile alcuno studio sui meccanismi di riorganizzazione durante transizioni di fase superficiali [2]. Il fascio X-FEL possiede sia la risoluzione temporale sufficiente per evidenziare gli stadi intermedi delle transizioni, che la brillantezza per fornire segnali rilevabili anche quando sia diffuso dal numero esiguo di atomi che costituiscono una superficie. Quindi una misura pump-probe tramite l'accoppiamento di due impulsi X-FEL potrebbe fornire utili informazioni a questo riguardo.

## **Bibliografia**

1. L. R. Benedetti et al., *Science* **286**, 100 (1999)
2. J. F. van der Veen, *Surf. Sci.* **433**, 1 (1999)

### Test di simulazioni al calcolatore

La crescita della potenza di calcolo dei processori digitali ha fornito l'opportunità di simulare il comportamento microscopico dei sistemi risolvendo in maniera approssimata le equazioni del moto, sia classiche che quantistiche, dei loro costituenti. Sono esempi di queste tecniche la dinamica molecolare ed il metodo Car-Parrinello. Tuttavia, a causa della complessità del sistema di equazioni che devono essere risolte simultaneamente ad ogni stadio della simulazione e a causa della dipendenza esponenziale del tempo di calcolo dal numero di gradi di libertà coinvolti, simulazioni realistiche possono essere condotte unicamente su scale temporali molto piccole (tipicamente del picosecondo). Una conferma dell'attendibilità dei risultati dei calcoli verrebbe dagli esperimenti sull'evoluzione strutturale di sistemi che, dopo una perturbazione, rilassano verso l'equilibrio termodinamico. In effetti, un campione cristallino può essere surriscaldato rapidamente e il processo conseguente alla fusione può essere seguito raccogliendo una serie di pattern di diffrazione di raggi-X in rapida successione. Tutto ciò è l'equivalente di una simulazione in cui gli atomi, inizialmente disposti nelle posizioni che occupano nel reticolo cristallino, siano liberi di muoversi sotto l'effetto di un bagno termico in cui vengano istantaneamente a trovarsi. In tal modo si avrebbe una corrispondenza diretta tra le configurazioni ottenute nella successione dei passi della simulazione e quelle osservate sperimentalmente. La diffrazione risolta temporalmente eseguita con

impulsi X-FEL potrebbe quindi rilevare la dinamica reale degli atomi che si muovono da una configurazione a bassa entropia a quella descritta dalla funzione di correlazione radiale all'equilibrio.

### **2.2.3 Studi basati sull'elevata brillantezza media: Diffrazione da diffusori deboli**

La brillantezza unica di un fascio X-FEL apre nuovi campi di ricerca per tutti quei sistemi che non sono in grado di diffondere fotoni efficacemente. Ciò può dipendere o dal basso numero di centri di scattering coinvolti, come in sistemi rarefatti, o dalla scarsa efficienza di ciascuno di essi, come nel caso di atomi a basso numero atomico. A questa categoria appartengono sistemi interessanti e, come esempi, possiamo citare i seguenti:

#### Soluzioni Diluite

Le soluzioni sono sistemi di rilievo dal punto di vista fondamentale in quanto, man mano che la loro diluizione cresce, esse tendono a comportarsi come descritto dai semplici modelli di Raoult ed Henry, che rivestono un'importanza straordinaria nella chimica analitica. Tuttavia, per effettuare misure di diffrazione di soluzioni diluite, cioè per osservare l'effetto di una piccola quantità di ioni di soluto sulla enorme maggioranza di particelle di solvente, deve essere usata una tecnica basata sul confronto tra diffrattogrammi. Assumendo che la presenza del soluto comporti una perturbazione piccola sull'arrangiamento microscopico iniziale del solvente puro, la minima differenza tra i pattern di diffrazione dovrebbe rivelare l'effetto della presenza del soluto. La statistica elevatissima necessaria per ottenere un risultato di accuratezza soddisfacente può essere ottenuta sfruttando l'intensità della sorgente X-FEL.

#### Nanoparticelle e Clusters

Cristalli di dimensioni estremamente piccole non producono picchi di Bragg quando irradiati con un fascio di raggi-X, a causa dell'effetto indotto dalle modeste dimensioni, dalla distribuzione casuale dei grani e dall'alta concentrazione di difetti che generalmente i grani contengono. I pattern di diffrazione di tali sistemi sono simili a quelli dei liquidi e richiedono metodi di elaborazione più complessi del classico affinamento di Rietveld. Inoltre è necessario un fascio incidente di alta intensità per ottenere una statistica sufficiente sul segnale diffratto.

Si definiscono nanocristalli aggregati aventi dimensioni lineari fino a 1000Å. L'interesse che i nanocristalli rivestono è dovuto alle loro particolari caratteristiche chimico-fisiche ed al ruolo che svolgono nei processi di nucleazione.

Da una parte, infatti, si potrebbero osservare proprio negli aggregati di dimensioni più piccole notevoli proprietà catalitiche dovute all'elevato rapporto superficie-volume ed effetti di confinamento quantistico simili a quelli presenti in strutture artificiali (quantum wells, wires e dots).

Inoltre, la classica teoria della cristallizzazione da una soluzione satura o da un liquido macromolecolare sottoraffreddato, descrive la nascita e la crescita spontanea di domini cristallini in termini di formazione random di piccoli cluster [5]. Solamente quando un cluster eccede una dimensione critica diventa termodinamicamente stabile e può essere il germe per lo sviluppo di un macrocristallo. Questa descrizione fenomenologica non include alcun dettaglio sulle fluttuazioni di dimensione dei cluster e sulla dinamica di formazione dei cristalli, che potrebbero invece essere fornite da una diffrazione X-FEL in tempo reale.

### Sistemi ad alto contenuto d'idrogeno

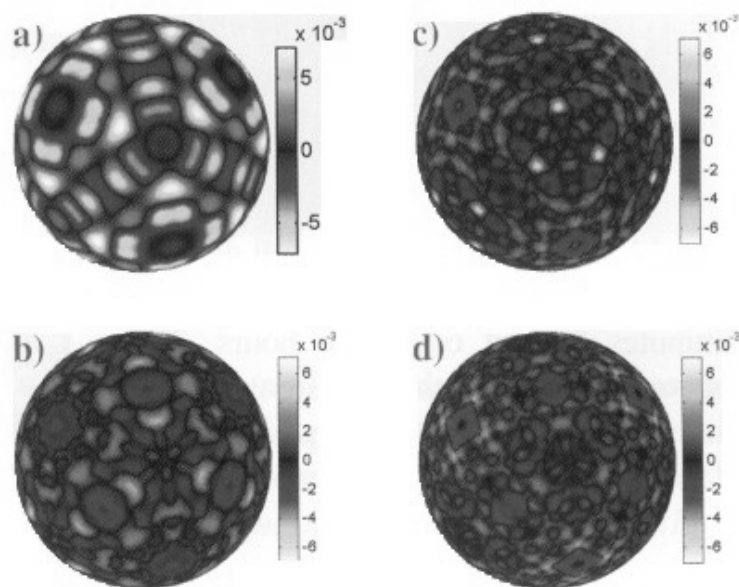
Un'ampia classe di composti tanto organici quanto inorganici è costituita in parte da atomi idrogeno. Tra di essi i polimeri e le molecole biologiche rivestono un ruolo fondamentale in molti campi diversi della scienza. Tuttavia la struttura di tali sistemi si è potuta studiare solo parzialmente con la diffrazione di raggi-X. Solitamente è stata preferita la diffrazione di neutroni benché i flussi, anche quelli prodotti da reattori nucleari, siano di diversi ordini di grandezza inferiori a quelli dei sincrotroni di terza generazione.

In esperimenti consueti di diffrazione di raggi-X, gli atomi di idrogeno sono normalmente considerati invisibili e la loro posizione nelle molecole o nei reticoli deve essere ricavata da conoscenze chimiche indipendenti dalla misura. Infatti, avendo gli atomi di idrogeno neutro un solo elettrone, poiché l'intensità di raggi-X scatterata elasticamente da un atomo è proporzionale al quadrato del suo numero atomico, essi non sono in grado di interagire efficientemente con un fascio di raggi-X.

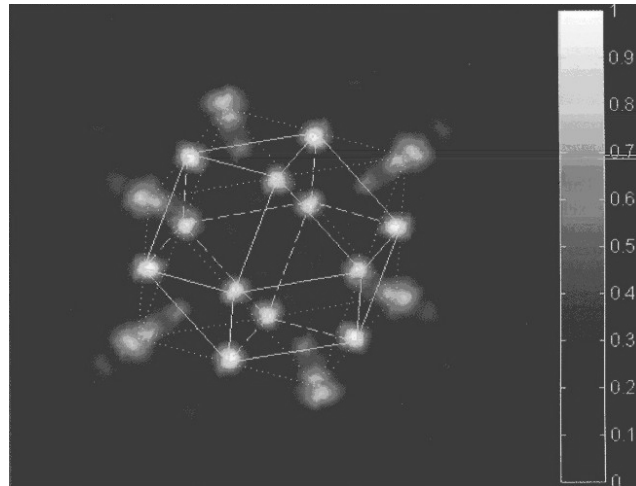
Anche a bassi valori di momento trasferito, gli atomi leggeri diffonderanno la radiazione principalmente in modo anelastico (Compton), così che il segnale rilevato contiene un'informazione strutturale molto povera (essendo contenuta unicamente nella parte di radiazione diffusa elasticamente). È quindi necessario un notevole aumento dell'intensità del fascio incidente per migliorare la statistica in modo che anche la minima perturbazione prodotta dalla componente coerente possa essere rilevata ed estratta dal fondo incoerente.

### 2.2.4 Diffrazione coerente: olografia di raggi X

Uno dei maggiori problemi della diffrattometria è che un pattern di diffrazione non può essere associato univocamente alla struttura del campione che lo ha prodotto. Infatti, la teoria della diffrazione di Fraunhofer stabilisce una relazione (Trasformata di Fourier) tra le modulazioni della radiazione diffusa da un sistema e la distribuzione spaziale degli elementi del sistema stesso. Per eseguire una Trasformazione di Fourier in maniera esatta occorre conoscere in ogni punto dello spazio reciproco tanto l'ampiezza quanto la fase del campo di radiazione elettromagnetica diffusa dal campione. Al contrario le figure di diffrazione consuete rappresentano soltanto l'intensità della radiazione, per cui l'informazione sulla fase è irrimediabilmente perduta. Per questo motivo solo in casi eccezionali è possibile ricostruire la struttura del campione disponendo unicamente dei dati diffrattometrici (vedi par. 2.2.1). In generale serviranno altre informazioni indipendenti, quali la simmetria del sistema, le distanze di legame o reticolari oppure vincoli sulle possibili configurazioni che il sistema può assumere. Per ovviare a questa limitazione occorre disporre di una tecnica che fornisca anche la fase della radiazione diffusa. A tal fine è stata utilizzata con successo una tecnica olografica basata sui raggi X ed analoga a quella che fa uso della luce visibile per riprodurre la sagoma tridimensionale degli oggetti. L'olografia di raggi X ha consentito di studiare la struttura di cristalli semplici [1], quale l'ossido di cobalto (vedi fig. 2.6 e 2.7).



**Fig. 2.6** Quattro ologrammi acquisiti a differenti energie (6.925, 13.861, 17.444, 18.915 keV) per minimizzare gli errori sistematici nella ricostruzione della struttura 3-D [1].



**Fig. 2.7: Distribuzione spaziale degli atomi di Co ottenuta dagli ologrammi precedenti [1]**

Per eseguire una misura di questo tipo si suddivide un fascio di raggi X coerente in due componenti e se ne invia una sul rivelatore (onda di riferimento) e l'altra sul campione. L'interferenza che si verifica sulla superficie del rivelatore tra l'onda di riferimento e l'onda diffusa dal campione produce un ologramma che consente la ricostruzione del fronte d'onda di quest'ultima e, di conseguenza, della disposizione tridimensionale degli atomi del campione.

L'ostacolo principale ad una vasta applicazione di questa tecnica è rappresentato dalla difficoltà di selezionare una porzione del fascio all'interno della quale la componente coerente non sia trascurabilmente piccola. Infatti, la coerenza spaziale (trasversa) di un fascio di raggi X emesso da un onduttore di un sincrotrone di terza generazione è piuttosto bassa e, per svolgere misure del tipo descritto, è necessario usare diaframmi che riducano la sezione trasversa del fascio a meno di 10 micron. Ciò comporta una attenuazione notevolissima dell'intensità di raggi X e una dilatazione conseguente dei tempi di misura, cosicché una singola acquisizione dura molte ore [2].

Grazie alla completa coerenza spaziale delle armoniche superiori del fascio prodotto dall'X-FEL sarà possibile studiare sistemi che abbiano lunghe distanze di legame (o interplanari nel caso di cristalli). È sottinteso che eseguendo l'olografia di raggi X nella modalità di pump-probe descritta precedentemente si potranno effettuare studi che concilino l'elevata risoluzione temporale con l'assoluta fedeltà della ricostruzione strutturale del campione.

## **Bibliografia**

1. M. Tegze and G. Faigel, *Nature* 380, 49 (1996)
2. M. Belakhovsky et al., *ESRF Newsletter*, October 2000, p. 12

## 2.2.5 Studi strutturali non diffrattometrici

### Spettroscopia di assorbimento di raggi X

È ben noto che la tecnica X-ray Absorption Fine Structure Spectroscopy (XAFS) risulta essere un potente strumento per la determinazione della struttura locale intorno ad un specifico sito atomico. La XAFS viene applicata in vari campi di ricerca quali la biologia, la chimica e la materia condensata. Questa tecnica ha subito notevoli miglioramenti negli ultimi anni grazie all'evoluzione della tecnologia degli anelli di accumulazione. Un ulteriore passo avanti nello sviluppo della tecnica XAFS può venire dall'uso di sorgenti di raggi X di quarta generazione quali i laser ad elettroni liberi (FEL) basati sul principio SASE (Self Amplified Stimulated Emission), che offriranno un guadagno di vari ordini di grandezza nella brillantezza, consentendo l'applicazione della XAFS a nuovi campi scientifici. Inoltre, la peculiare struttura temporale del fascio di radiazione emesso da un FEL permetterà di eseguire esperimenti di pump&probe in cui, utilizzando un laser di pompa, si possano stimolare dei cambiamenti di struttura o transizioni di fase da osservare mediante la XAFS, oppure reazioni chimiche estremamente veloci quali le reazioni di catalisi eterogenea.

L'uso di un FEL come sorgente in esperimenti XAFS migliorerà, inoltre, la tecnica di Raman scattering nella misura dello spettro di assorbimento di atomi a basso numero atomico, fornendo nuove opportunità nel campo della chimica e della scienza dei materiali. La tecnica del Raman scattering estende l'uso della spettroscopia XAFS ad atomi leggeri immersi in una matrice fortemente assorbente. Attualmente l'applicazione della XAFS ad atomi a basso numero atomico è limitata perché, a causa del basso potere di penetrazione dei raggi X molli, è necessario studiare film estremamente sottili o superfici di campioni solidi. Quindi attualmente, malgrado la grande importanza di elementi quali carbonio azoto ed ossigeno nella scienza dei materiali e nella biologia, non è possibile studiare mediante la XAFS elementi leggeri in campioni reali.

Un modo per superare queste difficoltà è l'uso della diffusione anelastica di fotoni o Raman XAFS. Lo stretto legame tra l'assorbimento di raggi X e la diffusione Raman è stata stabilita circa trenta anni fa [1-4]. La teoria prevede, per la diffusione Raman, una probabilità di transizione simile al quadrato dell'elemento di matrice di transizione dipolare che determina l'assorbimento di raggi X. Questo significa che uno spettro ottenuto con questa tecnica è simile a quello ottenuto dall'assorbimento alla soglia K di un elemento a basso peso atomico, eccetto per la dipendenza angolare e la ridotta intensità, senza problemi per la contaminazione della superfici.

La regione della diffusione anelastica Raman può essere osservata con alta risoluzione e buon rapporto segnale-rumore, con raggi X di lunghezza d'onda dell'ordine di 1Å o minore. Un possibile apparato sperimentale è riportato in [5].

A causa della ridotta sezione d'urto della diffusione Raman questa tecnica, nel passato, non è stata significativamente sviluppata. Recentemente sono stati ottenuti spettri di buona qualità [6] della grafite e del diamante, dimostrando che le strutture fini osservate con la diffusione Raman sono peculiari di ogni sostanza ed hanno una diretta corrispondenza con quelle osservate negli spettri di assorbimento.

L'uso di sincrotroni di terza generazione ha dimostrato che questo metodo può essere applicato con successo nella caratterizzazione del carbonio nell'asfaltene (mistura di idrocarburi aromatici [7]), per cui è prevedibile che, in futuro, tale tecnica avrà un'applicazione rilevante nello studio di elementi leggeri, nei combustibili, nella catalisi e negli altri materiali complessi.

Sorgenti di quarta generazione come gli X-FEL daranno la possibilità di migliorare la risoluzione temporale di esperimenti di questo tipo e di applicare questa spettroscopia anche a campioni massivi in cui gli elementi leggeri sono presenti a bassissime concentrazioni.

## **Bibliografia**

1. Y. Mizuno and Y. Ohmura, J. Phys. Soc. Jpn. **22**, 445 (1967)
2. N.G. Alexandropoulos, Phys. Rev. B **3**, 2670 (1971)
3. S. Doniach, P.M. Platzman and J.T. Yue, Phys. Rev. B **4**, 3345 (1971)
4. G.G. Cohen, N.G. Alexandropoulos and M. Kuriyama, Phys. Rev. B **8**, 5427 (1973)
5. K. Tohji and Y. Udagawa, Phys. Rev. B **36**, 9410 (1987)
6. K. Tohji and Y. Udagawa, Phys. Rev. B **39**, 7590 (1989)
7. U. Bergman, O. C. Mullins and S.P. Cramer, Anal. Chem. **72**, 2609 (2000)

## Riflettometria di raggi X

Dalla legge di Snell in ottica classica si ricava che, quando un fascio di luce passa attraverso un'interfaccia tra due mezzi aventi un indice di rifrazione differente, esso è deviato rispetto alla direzione di provenienza. In particolare, se l'indice di rifrazione del secondo mezzo è minore, il fascio sarà riflesso totalmente non appena l'angolo di incidenza scende sotto un valore di soglia (angolo critico) [1]. In ottica l'indice di rifrazione è una funzione crescente della densità, per cui si assiste alla riflessione totale passando da un mezzo più denso ad uno meno denso (ad esempio, dalla materia condensata all'aria). La regola di Snell è ancora valida alle energie caratteristiche dei raggi X. Tuttavia la relazione tra densità ed indice di rifrazione si inverte e il fenomeno della riflessione totale si verifica passando da un materiale meno denso ad uno più denso (dall'aria alla materia condensata). Ciò consente di utilizzare la riflettometria come uno strumento per indagini fisiche e di scienza dei materiali perché un fascio di raggi X incidente su un campione (sia esso in aria o in



vuoto) potrà essere riflesso totalmente. In condizioni di riflessione totale, nel campione penetra un'onda stazionaria (evanescente) la cui ampiezza decresce esponenzialmente al crescere della profondità dalla superficie. Siccome la profondità di penetrazione dipende dall'angolo di incidenza  $\vartheta$ , eseguendo una scansione a partire da valori molto piccoli di  $\vartheta$  (incidenza radente), si potrà esplorare una porzione di campione (a partire dalla superficie) progressivamente più spessa. Di conseguenza si potranno eseguire misure di scattering di raggi X, basate sull'effetto di riflessione totale, anche su campioni di materia soffice, quali sistemi biologici, riducendone drasticamente i danni da irraggiamento.

## **Bibliografia**

1. X.L. Zhou and S. H. Chen, Phys. Rep. **257**, 223 (1995)

### Diffusione anelastica di raggi X

Solitamente quando ci si riferisce alla diffusione anelastica di raggi X si intende l'effetto Compton. Esso consiste nel trasferimento di energia dalla radiazione elettromagnetica ad un elettrone atomico che, di conseguenza, è espulso dall'atomo, cioè il sistema atomico iniziale è frammentato per effetto dell'interazione.

Poiché la massa atomica è così elevata da non subire variazioni rilevanti del suo impulso a seguito della diffusione di un fotone, la possibilità che il trasferimento di energia possa coinvolgere l'atomo nella sua interezza (cioè senza che venga frammentato) non è solitamente presa in considerazione. Tuttavia il modello appena descritto non è che una approssimazione, in quanto una piccola porzione dell'energia del fotone può effettivamente essere ceduta all'atomo (principalmente al nucleo) sotto forma di aumento dell'energia cinetica di quest'ultimo. Per tale motivo è possibile ottenere informazioni sui movimenti atomici tramite la spettroscopia della radiazione diffusa anelasticamente [1]. Sotto questo aspetto la spettroscopia anelastica di raggi-X consente di misurare il fattore di struttura dinamico  $S(q, \omega)$ , fornendo informazioni analoghe a quelle ottenibili con la spettroscopia di neutroni [2].

La differenza tra le due tecniche è che i neutroni sono sensibili alla dinamica dei nuclei, mentre i raggi X alla dinamica degli elettroni atomici e che le zone dello spazio  $(q, \omega)$  accessibili alle due tecniche sono diverse.

Il problema principale della diffusione anelastica di raggi X è che la risoluzione energetica deve essere molto alta, dal momento che la variazione relativa di energia è minima (meV di variazione in fotoni di diversi keV). A tale scopo si deve far uso di monocromatori in geometria di retrodiffusione, il che corrisponde ad utilizzare riflessione di Bragg di ordine elevatissimo e, quindi, ad una enorme perdita di segnale. Il flusso di fotoni raccolto durante un tipico esperimento di questo

tipo è dell'ordine di un fotone al secondo. L'alta intensità e la straordinaria collimazione del fascio prodotto dall'X-FEL ridurrà i tempi di acquisizione entro limiti accettabili (minuti), consentendo anche lo studio di campioni ad alto numero atomico che era precluso dal concomitante problema dell'assorbimento. Si potranno svolgere indagini su sistemi di grande interesse quali superconduttori ad alta  $T_c$ , in cui gli elettroni determinano molte proprietà fisiche; sulla dinamica dei sistemi disordinati e/o complessi, quali liquidi, vetri, semicristalli (polimeri), cristalli liquidi e sulle eccitazioni che coinvolgono onde di carica lungo il sistema.

### **Bibliografia**

1. G Gruebel et al., Proceedings of the 4<sup>th</sup> Generation Light Source Workshop, Advanced Photon Source, Argonne, (1997)
2. S. Dierker, NSLS Newsletter, Brookhaven National Lab., (1995)

## 2.3 Spettroscopia con la radiazione X-FEL

### 2.3.1 Fisica del Plasma

#### *Interazione laser-plasma: modelli teorici*

Studiare il plasma prodotto dall'azione del fascio laser su diversi bersagli, necessita di metodi teorici sviluppati specificamente per sistemi lontani dall'equilibrio. Questi metodi, che saranno riassunti nelle pagine seguenti, si rendono necessari in quanto il plasma prodotto sarà caratterizzato da una complessa interazione tra fenomeni plasmadinamici, di trasporto e di cinetica veloce. In particolare si trova che la distribuzione della velocità delle particelle cariche non segue la legge di Maxwell, mentre la distribuzione delle popolazioni degli stati interni degli ioni non segue la legge di Boltzmann. Per questo si possono considerare solo metodi di modellizzazione di tipo cinetico capaci di trattare situazione di non equilibrio spinto, quando non sia addirittura necessario abbandonare la cinetica delle popolazioni e considerare effetti di coerenza complicati dall'ambiente plasma-dinamico. Questi fenomeni, a causa della reciproca interazione costituiscono un tutto unico, che è bene studiare mediante una tecnica 'auto consistente', anziché dividendo il problema globale in domini separati. Un obiettivo è quindi realizzare un modello della interazione laser-plasma costituito dai seguenti moduli interattivi:

#### *Trasporto di elettroni e ioni mediante equazione di Boltzmann e Vlasov/Boltzmann*

Il modulo consisterà di due sottomoduli selezionabili a seconda che si desideri una modellizzazione per il caso uniforme o spazialmente esteso, nel secondo caso si avrà un dettaglio molto maggiore ma con un maggiore costo computazionale più grande in proporzione. Nel primo caso si utilizzerà la soluzione della equazione di Boltzmann nella approssimazione quasi-isotropa, ovvero ottenuta mediante sviluppo in armoniche sferiche troncato al secondo termine della distribuzione di velocità degli elettroni. Nel secondo caso si utilizzerà la soluzione numerica della equazione di Vlasov/Boltzmann mediante metodo Particle-in-Cell/Monte Carlo (PIC/MC) multispecie. In entrambi i casi si terranno in conto gli effetti collisionali di particelle cariche con specie eccitate mediante accoppiamento con il modello di cui al seguente punto (2). Esistono applicazioni di questo metodo autocostistente (1,2) per l'equazione di Boltzmann [1,2] e per l'equazione di Boltzmann/Vlasov[3]. Nel caso che interessino tempi caratteristici assai brevi, nei quali non si può ancora trascurare la struttura a bande di conduzione del solido metallico bersaglio,

si potrà utilizzare la soluzione dell'equazione di Boltzmann per elettroni in un reticolo metallico, mediante un apposito codice numerico [4].

### *Modello collisionale-radiativo*

Nella diagnostica dei plasmi è importante studiare il rilassamento dei livelli interni di atomi e molecole che emettono radiazione. In questo sistema si presentano due tipi di fenomeni che agiscono in modo opposto: le collisioni elettrone-atomo (e-A) che spingono il sistema verso l'equilibrio locale ed il decadimento radiativo, che, a causa dei diversi tempi di decadimento, è la causa principale di non-equilibrio. I coefficienti di velocità dei processi e-A dipendono dalla funzione di distribuzione degli elettroni il cui rilassamento dipende dalla distribuzione dei livelli interni degli atomi. La forte non-linearità del sistema rende necessaria la soluzione contemporanea (autoconsistente) dell'equazione di Boltzmann per la cinetica elettronica nell'approssimazione quasi isotropa e delle equazioni cinetiche per calcolare l'evoluzione della distribuzione dei livelli energetici degli atomi. Le equazioni possono essere corrette anche per il caso del riassorbimento di fotoni. In questo modo è possibile determinare direttamente le distribuzioni energetiche e verificare la presenza di condizioni di nonequilibrio[5]. Per l'interazione di radiazione molto intensa con atomi e molecole è necessario considerare anche lo spopolamento di livelli interni (eccitazione o ionizzazione) per assorbimento multifotonico e/o di raggi X. I modelli descritti sopra possono essere estesi anche a tali sistemi.

### *Cinetica della matrice densità per processi veloci*

Per tempi di interazione laser/bersaglio nell'ordine del picosecondo l'assorbimento della radiazione laser da parte del plasma non può essere descritto mediante le equazioni di bilancio della cinetica delle popolazioni, in quanto occorre considerare la coerenza quantistica tra gli stati interni ionici sottoposti al campo di radiazione, e quindi lavorare al livello della matrice densità. Al tempo stesso, occorre considerare il non equilibrio traslazionale del plasma di cui al punto (1), per cui le tecniche e le rappresentazioni usuali non sono efficaci. È stata recentemente sviluppata una tecnica numerica stocastica basata su una innovativa rappresentazione dello stato misto quantico/classico di un gas [6-8] nel quale ha luogo una cinetica coerente di stati interni durante il rilassamento gasdinamico. La tecnica sarà applicata al caso di studio di questo progetto con le opportune modifiche.

### *Espansione della plume*

Una caratteristica dell'interazione di laser impulsati con la materia (gas, liquido o solido) è la produzione di un plasma localizzato in una regione molto piccola che espande supersonicamente. Tale sistema può essere usato sia a fini diagnostici che applicativi (produzione di raggi X, deposizione di film sottili etc.). Lo studio teorico di tale sistema verrà fatto risolvendo le equazioni di Eulero dipendenti dal tempo nell'approssimazione monodimensionale o quasi-monodimensionale (la dispersione angolare della plume è molto piccola)[9]. Data l'alta velocità di espansione e la differenza di pressione fra la plume e il buffer i tempi caratteristici del flusso possono essere confrontabili con quelli dei processi cinetici. In tali condizioni è possibile avere zone in cui il sistema è molto lontano dall'equilibrio. A tal fine l'accoppiamento autoconsistente delle equazioni fluidodinamiche con le equazioni del modello collisionale radiativo diventa necessario per la corretta descrizione del sistema. Sarà anche presa in considerazione la possibilità di sviluppare modelli bidimensionali.

### *Dinamica di processi elementari in atomi e molecole*

La modellizzazione di sistemi plasmico chimici in condizioni di non equilibrio spinto, richiedono la conoscenza delle sezioni d'urto relative a tutti quei processi elementari che determinano la popolazione dei livelli energetici e la concentrazione delle singole specie chimiche. Tali processi elementari sono rappresentati da collisioni fra varie specie presenti nel sistema come:

- collisioni tra elettroni e molecole vibrazionalmente ed elettronicamente eccitate seguite da eccitazione elettronica, dissociazione o ionizzazione;
- eccitazione elettronica indotta da impatto elettronico e seguita da decadimento radiativo;
- collisioni risonanti tra elettroni e molecole vibrazionalmente eccitate;
- collisioni elettrone - atomo;
- collisioni atomo - atomo;
- collisioni atomo - molecola biatomica e molecola -molecola.

Le sezioni d'urto per tali processi e le relative costanti di velocità saranno ottenute mediante metodi di calcolo semiclassici e quantistici [10-14].

Inoltre per sistemi costituiti da molecole biatomiche ( $H_2, N_2, O_2$ ) si simulerà l'evoluzione di un pacchetto d'onda, sovrapposizione coerente di livelli vibrazionali in uno stato elettronico eccitato, generato per interazione di una molecola isolata nello stato elettronico fondamentale e in un definito livello vibrazionale con un impulso laser (ultrabreve) di pompaggio, procedendo alla risoluzione con metodi numerici dell'equazione di Schrödinger dipendente dal tempo.

La simulazione potrà descrivere la dinamica del pacchetto d'onda nello stato eccitato includendo aspetti quali la formazione di stati quasi legati, la predissociazione o la dissociazione diretta, in termini di canali finali, oppure la dinamica nello stato fondamentale [15-17] di un pacchetto d'onda formato trasferendo, con un nuovo impulso laser (ultrabreve), una parte della popolazione dello stato eccitato nuovamente sullo stato fondamentale.

Verrà studiato un sistema reale e nella modellizzazione inclusi effetti dovuti alla anarmonicità dei livelli vibrazionali eccitati più alti o alla dipendenza dalla distanza internucleare del momento di transizione che accoppia gli stati coinvolti nella dinamica.

## Bibliografia

1. M.Capitelli, C.M.Ferreira, B.F.Gordiets and N.Osipov “*Plasma kinetics in atmospheric gases*” Springer Verlag 2000
2. M.Capitelli, G.Colonna, A.Gicquel, C.Gorse, K.Hassouni, and S.Longo: 'Maxwell and non-Maxwell behaviour of electron energy distribution function under expanding plasma jet conditions: the role of electron-electron, electron-ion and superelastic electronic collisions under stationary and time-dependent conditions', *Phys.Rev.E* **54**, 1843 (1996)
3. S.Longo: 'Monte Carlo Models of Electron and Ion Transport in Non Equilibrium Plasmas', *Plasma Sources Science and Tech.* **9**, 468 (2000)
4. S.Longo, L.D.Pietanza, F.A.Tassielli and M.Capitelli: "Non-equilibrium electron energy distribution function in Au under sub-picosecond laser irradiation: a kinetic study" *Laser and Particle Beams* (2002) in press
5. G.Colonna, L.D.Pietanza and M.Capitelli: "Coupled solution of a time-dependent collisional radiative model and Boltzmann equation for atomic hydrogen plasmas: possible implications with LIBS plasmas" *Spectrochimica Acta Part B* **56**, 587 (2001)
- G.J.Pert "The calculation of the electron distribution function following tunneling ionization using a Fokker-Planck method", *J.Phys.B* **34**, 881 (2001)
6. S.Longo: 'Stochastic models for the kinetics of ensembles of two level systems', *Physics Letters A* **267**, 117 (2000); S.Longo, D.Bruno, M.Capitelli, P.Minelli: 'A Monte Carlo model for the non-equilibrium coherent kinetics of ensembles of two level systems', *Chemical Physics Letters* **320**, 311 (2000)
7. S.Longo, D.Bruno, P.Minelli: 'Direct simulation of non-linear interparticle relaxation of ensembles of two level systems', *Chem. Phys.* **256**, 265 (2000)
8. S.Longo, D.Bruno: 'Models for gas-phase coherent kinetics including correlations with flow quantities', *Chemical Physics*, **264** 211 (2001)

9. G.Colonna, A.Casavola and M.Capitelli "Modelling of LIBS plasma expansion" *Spectrochimica Acta Part B* **56**, 567 (2001)
10. R.Celiberto, R.K.Janev, A.Laricchiuta, M.Capitelli, J.M.Wadehra and D.E.Atems, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **77**, 1 (2001)
11. A.Laricchiuta, R.Celiberto, M.Capitelli, *Chem.Phys.Lett.* **329**, 526 (2000)
12. R.Celiberto, A.Laricchiuta, U.T.Lamanna, R.K.Janev, and M.Capitelli, *Phys.Rev.A* **60**, 2091 (1999)
13. F.Esposito, M.Capitelli, E.V.Kustova, E.A.Nagnibeda, *Chem.Phys.Lett.* **330**, 207 (2000)
14. F.Esposito, C.Gorse, M.Capitelli, *Chem.Phys.Lett.* **303**, 636 (1999)
15. V.V.Eryomin, I.M.Umanskii, N.E.Kuz'menko, *Chem.Phys.Lett.* **316**, 303 (2000)
16. S.Meyer, M.Schmitt, A.Materny, W.Kiefer, V.Engel, *Chem.Phys.Lett.* **301**, 248 (1999)
17. H.Schwoerer, R.Pausch, M.Heid, W.Kiefer, *Chem.Phys.Lett.* **285**, 240 (1998)

*Ricerca avanzata di fisica del plasma con gli impulsi X ai femtosecondi prodotti con il SASE-FEL*

La possibilità di produrre plasmi densi e di studiarne l'evoluzione sulla scala temporale del femtosecondo (fs) si è recentemente aperta grazie alla nuova generazione di laser ai fs di alta potenza che operano in regime CPA (Chirped Pulse Amplification). Su tale scala di tempi i plasmi prodotti sono virtualmente "fermi" da un punto di vista idrodinamico, il che consente di studiarne le proprietà intrinseche come prima non era mai stato possibile. Questo consente, tra l'altro, di concepire applicazioni innovative in vari campi, tra cui la fusione per confinamento inerziale (ICF), la generazione di fasci di fotoni e/o particelle di alta energia, fino alla lavorazione di materiali con altissima precisione.

Tuttavia la produzione di plasmi densi con impulsi laser ai fs ha due notevoli limitazioni. La prima consiste nella impossibilità (prevista dalla teoria classica) da parte della radiazione di penetrare, e quindi depositare energia, a densità elettroniche maggiori di quella critica che, per i laser esistenti (che operano a frequenze ottiche), è ordini di grandezza inferiore alla densità elettronica dei solidi. Il secondo è un limite tecnologico a tutt'oggi presente, cioè la inevitabile presenza di radiazione di intensità non trascurabile nel fascio laser prima dell'impulso ai fs. Questo pre-impulso è soprattutto dovuto alla amplificazione della emissione spontanea (ASE) sulla scala dei nanosecondi (ns) e può causare la produzione anticipata del plasma e quindi impedire all'impulso ai fs di interagire direttamente con il solido, condizione necessaria per produrre plasmi di alta densità. È in corso un notevole sforzo tecnologico per aumentare drasticamente il *contrasto* (rapporto tra la potenza di picco dell'impulso ai fs e quella del pre-impulso). Per quanto riguarda il limite posto dalla densità critica, ci sono le prime indicazioni favorevoli che il limite possa essere

superato in condizioni di altissima intensità. È comunque evidente che la eventuale disponibilità di impulsi X ai femtosecondi, coerenti, collimati, di alta potenza, cambierebbe completamente lo scenario in questo campo. Infatti la lunghezza d'onda molto minore consentirebbe la deposizione diretta di energia nel plasma denso. Questo naturalmente nell'ipotesi (generalmente condivisa per il FEL) che l'energia che raggiunge il campione prima dell'impulso principale sia trascurabile. Un'altra questione cruciale è quella che riguarda il *contrasto*.

Si consideri un singolo impulso di durata tra 20 e 200 fs contenente circa  $10^{13}$  fotoni da 1-keV che irraggia un campione di oro con uno spot di  $10^{-6}$  cm<sup>2</sup>. La lunghezza di attenuazione può essere stimata dell'ordine di  $10^{-5}$  cm. Si può pensare di depositare 100 nm di Au su un foglio di plastica (basso Z) dello spessore di 100 nm. Irraggiando un campione di questo tipo nelle condizioni sopra indicate, si hanno condizioni di interazione estremamente interessanti, nelle quali il numero di fotoni X coinvolti e potenzialmente assorbiti è paragonabile al numero degli elettroni disponibili.

La fisica dell'interazione in queste condizioni non è banale e sostanzialmente tutta da investigare. Ci si aspetta un tasso di ionizzazione estremamente alto, che coinvolge anche i gusci più interni. Gran parte degli elettroni dovrebbe passare dallo stato legato a quello libero in un tempo inferiore al fs. Secondo la teoria [1], in queste condizioni la radiazione ottica può propagarsi ben oltre la densità critica. Ci sono anche delle evidenze sperimentali [2] di questo fondamentale effetto, anche se ulteriori verifiche sono rese difficili dalla produzione precoce di plasma da parte dell'ASE di cui si è detto sopra.

Naturalmente altrettanto interessante può essere lo studio di fenomeni di trasparenza del plasma indotti dallo stesso impulso X. Effetti di questo tipo possono tra l'altro costituire una strada per accorciare l'impulso verso durate sulla scala degli attosecondi.

È opportuno rilevare che con un tale impulso X ci si aspetta di produrre un plasma molto denso ma relativamente freddo. Si possono effettuare simulazioni con codici numerici ad hoc, sulla cui gestione il nostro gruppo ha una lunga esperienza. Si può comunque sin da ora prevedere che si tratti di un plasma Fermi-degenere: condizione della materia di grande interesse. Se poi si pensa che la densità del plasma può essere portata con onde d'urto ben al di sopra della densità del solido, si apre un vasto campo di studio per le equazioni di stato (EOS) della materia ionizzata in condizioni estreme.

#### *Applicazioni agli studi di confinamento inerziale*

È ben noto che alcune delle più importanti diagnostiche per i plasmi laser-ICF si basano sui raggi X. Di solito almeno uno dei fasci laser impiegati negli esperimenti ICF è usato per irraggiare un bersaglio indipendente ad alto Z per produrre una sorgente puntiforme intensa di radiazione X (incoerente e policromatica) per realizzare micro-radiografie del plasma, in particolare della regione



di alta densità il cui studio è determinante per ottenere la compressione desiderata evitando dannose instabilità. È evidente l'enorme vantaggio che si avrebbe con un impulso X coerente: si potrebbero progettare e implementare tecniche molto più efficaci, basate sull'interferometria e l'olografia. La fattibilità di un interferometro X per misure di alta densità in un plasma è già stata dimostrata presso il Lawrence Livermore National Lab [3] usando un laser a raggi X ottenuto pompando un plasma con impulsi laser. Tuttavia i laser a raggi X operano a tutt'oggi ad intensità e lunghezze d'onda troppo basse per poter essere usati come mezzo diagnostico per plasmi di alta densità in un contesto ICF. Gli impulsi X forniti dal SASE-FEL fornirebbero invece una risorsa eccellente per questo tipo di diagnostica.

Un impiego privilegiato per l'impulso X del FEL può essere infine pensato per gli studi di *Fast Ignition* in ambito ICF. Tale schema, proposto originariamente da Tabak nel 1994, dovrebbe consentire di superare le enormi difficoltà legate alla ignizione di volume per pura compressione. I raggi X sono una opzione privilegiata per depositare localmente energia nel combustibile compresso. Negli schemi correnti il contenuto energetico richiesto all'impulso è superiore a quello attualmente ipotizzato per l'impulso FEL, mentre la durata di qualche centinaio di fs potrebbe essere ottimale. Tuttavia un impulso FEL come quello ipotizzato consentirebbe di realizzare esperimenti scalati che fornirebbero informazioni decisive per l'effettiva utilizzazione dell'ICF nella produzione di energia.

### **Bibliografia:**

1. D. Teychenné et al., Phys Rev. E **58**, R1245 (1998)
2. D. Giulietti et al., Phys Rev Lett. **79**, 3194 (1997)
3. L. B. Da Silva et al., Phys Rev Lett. **74**, 3991 (1995)
4. M. Tabak et al., Phys. Plasmas **1**, 1626 (1994)

### 2.3.2 Atomi , Molecole e Cluster

Negli ultimi vent'anni le sorgenti laser nelle regioni di lunghezze d'onda dell'infrarosso, visibile e UV e le sorgenti di radiazione di sincrotrone nelle regioni del VUV e dei raggi X sono diventate gli strumenti più utili e versatili nella ricerca fondamentale ed applicata, nonché in diversi settori della tecnologia. La fisica atomica e molecolare e la chimica fisica hanno tratto ampi benefici dall'elevato flusso e risoluzione della terza generazione di sorgenti di radiazione di sincrotrone [1,2] come pure dai brevi impulsi ad alta intensità dei laser al fs [3]. La combinazione di impulsi di durata di qualche fs, una struttura temporale flessibile ed un alto flusso di picco e medio nella regione dei raggi X della proposta facility X-Fel offre ulteriori opportunità e nuove sfide a questa comunità.

Fra le opportunità possiamo includere le applicazioni di metodi e tecniche stabilizzate , basate sull'assorbimento di un solo fotone, che, per esempio, possono trarre vantaggio dall'alto flusso della nuova sorgente per affrontare tematiche note, ma con un livello di dettaglio non raggiungibile attualmente o per studiare bersagli a bassa densità. In questa categoria possono essere inseriti gli studi dei satelliti di shake-up o dovuti alle correlazioni elettroniche, la fotoeccitazione e fotoionizzazione di orbitali interni, la fluorescenza indotta dall'assorbimento di radiazione in atomi neutri, in ioni singolarmente o multiplamente carichi e bersagli allineati o orientati oppure lo studio della dinamica, dei flussi energetici e rilassamenti in molecole o specie radicaliche.

Tra le nuove sfide si devono includere tutte quelle tematiche non ancora esplorate che fanno uso specificatamente delle caratteristiche della nuova sorgente e hanno bisogno di nuova strumentazione sviluppata ad-hoc. Tipici esempi sono gli esperimenti a due o più fotoni e gli esperimenti di "pump-probe".

Nei prossimi paragrafi alcune di queste tematiche e gli esperimenti proposti verranno illustrati brevemente.

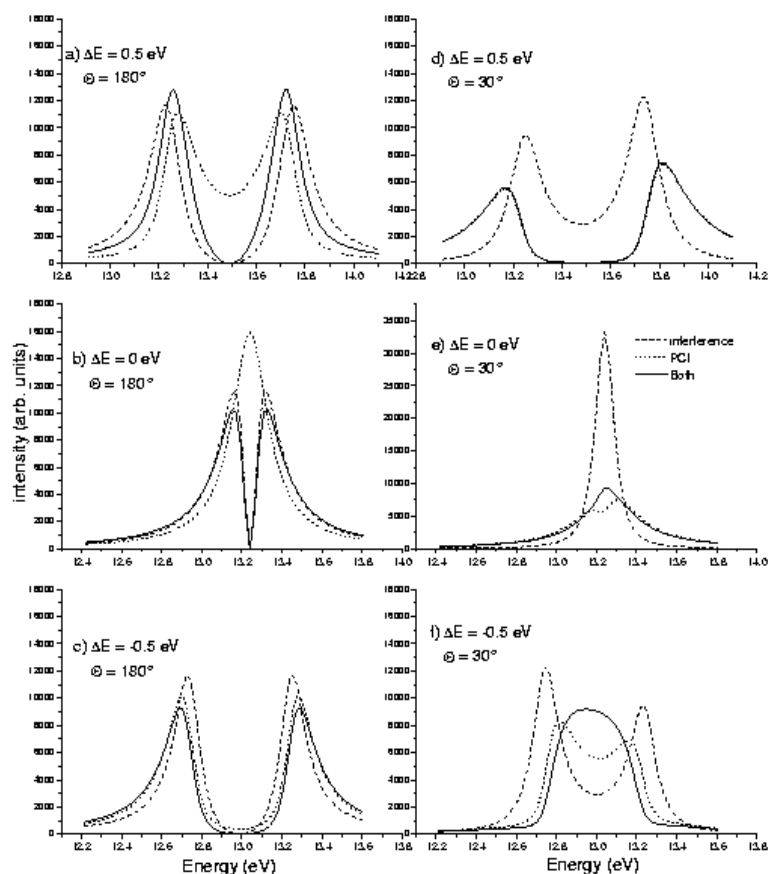
#### *Eccitazione/ionizzazione di shell interne a due fotoni e doppia ionizzazione.*

La ionizzazione multifotonica di atomi e molecole è stata ampiamente studiata con sorgenti laser nella regione del visibile [4]. In questo caso l'interazione non-lineare tra l'atomo e il campo di radiazione è parzialmente mascherata dall'energia ponderomotrice del campo. Nella regione dei raggi X questo termine, che scala come  $1/\omega^2$ , dove  $\omega$  è la frequenza della radiazione incidente, è piccolo confrontato con il trasferimento di energia. Perciò lavorare nella regione dei raggi X permetterà di verificare la teoria dell'interazione non-lineare tra radiazione e materia in modo più

diretto. Le sezioni d'urto a due fotoni per l'eccitazione/ionizzazione delle shell interne dei gas rari sono state calcolate [5]. Questi studi hanno mostrato che il processo di eccitazione/ionizzazione a due fotoni di shell interne, a differenza di quello di shell esterne [6], è caratterizzato dagli effetti a più elettroni. Così diversi valori e forme della sezione d'urto sono predetti a seconda del tipo di correlazioni elettroniche considerate nella descrizione teorica.

L'assorbimento a due fotoni permette di popolare stati non osservabili nell'assorbimento ad un fotone, per esempio nella regione della soglia K del Ne le transizioni  $1s \rightarrow 3s, 4s, 3d$  e  $4d$  possono essere osservate [5]. Pertanto i primi esperimenti saranno dedicati alla misura dello spettro di fotoassorbimento in Ar e Ne ad energie del fotone prossime alla metà dei potenziali di ionizzazione degli stati  $2p$  in Ar e  $1s$  in Ne. Questo permetterà di verificare direttamente la popolazione degli stati eccitati di core in prossimità delle soglie L dell'Ar e K del Ne. Il verificarsi dell'assorbimento a due fotoni può essere studiato alternativamente o attraverso la misura dello spettro Auger risonante sotto le soglie o di quello diagrammatico al di sopra.

Nella descrizione teorica [5] dei processi a due fotoni un ruolo chiave è giocato dall'effetto quantistico di interferenza del processo di eccitazione/ionizzazione della shell interna con il decadimento della vacanza virtuale creata. L'assorbimento di due fotoni avviene durante la durata dell'impulso, cioè 10-100 fs. Questo tempo è comparabile con la vita media della lacuna interna. Normalmente la ionizzazione di una shell interna ed il suo decadimento attraverso un processo Auger sono trattati come due processi indipendenti ed incoerenti. Recentemente la combinazione della possibilità di variare con continuità la lunghezza d'onda della radiazione incidente e l'alta risoluzione delle sorgenti di radiazione di sincrotrone di terza generazione e la selettività delle misure di coincidenza elettrone-elettrone hanno permesso di studiare questi processi in condizioni in cui l'approssimazione a due step non è valida. Effetti dovuti alle interazioni di stato finale come pure all'effetto di scambio tra il fotoelettrone e l'elettrone Auger sono stati predetti [7,8] ed osservati sperimentalmente [9-12]. Un esempio dell'evoluzione di questi effetti in funzione dell'energia del fotone incidente e dell'angolo di emissione relativo dei due elettroni nel caso della fotoionizzazione dello stato satellite  $Ne^+(2s2p^53p)$  è mostrato in figura 2.8. Poiché la scala dei tempi dell'assorbimento a due fotoni è confrontabile con il tempo di rilassamento della buca di core sorge la questione di se e come questi effetti si manifesteranno nelle distribuzioni energetiche ed angolari degli elettroni Auger. Un'ulteriore questione riguarda la possibilità di osservare l'emissione Auger dallo stato virtuale creato.



**Fig. 2.8 :** Evoluzione dello spettro di coincidenza fotoelettrone/elettrone Auger dello stato satellite  $\text{Ne}^+(2s2p^5 3p)$  in funzione dell'energia del fotone e dell'angolo di emissione relativa. L'energia del fotone è stata scelta in modo di ottenere  $\bullet E = E_{\text{photoelectron}} - E_{\text{Auger}} = -0.5, 0$  and  $0.5$  eV. Le linee a punti, tratteggiata ed in tratto pieno corrispondono rispettivamente a calcoli che includono soltanto il termine di interferenza a causa dello scambio dei due elettroni, l'interazione di stato finale (interazione post collisionale, PCI) ed entrambi i contributi.

La doppia fotoionizzazione avviene quando un singolo fotone è assorbito da un bersaglio e due elettroni sono emessi. A causa della natura a particella singola dell'interazione di un fotone con la materia l'emissione dei due elettroni è dominata dalle correlazioni elettroniche. L'informazione che può fornire sulle correlazioni elettroniche ed il ruolo che le correlazioni elettroniche giocano nella dinamica delle reazioni chimiche e in parecchi effetti nella fisica della materia condensata hanno reso la doppia fotoionizzazione un "hot topic" negli ultimi anni [13,14]. Recentemente è stata realizzata la doppia fotoionizzazione a molti fotoni utilizzando la radiazione di un laser a Ti zaffiro ( $\lambda = 800$  nm;  $I = 10\text{-}100$  Twatt/cm; pulse duration 10-100 fs) con l'assorbimento di parecchie decine di fotoni [15,16]. La questione principale è se il processo avviene attraverso l'emissione correlata dei due elettroni oppure è un processo sequenziale. I risultati preliminari relativi alla misura della distribuzione di momento degli ioni doppiamente carichi in funzione dell'intensità della radiazione incidente mostrano che il processo non è sequenziale [15,16]. Comunque non è ancora chiaro se l'emissione dei due elettroni avviene attraverso uno shake-off del secondo elettrone, un fenomeno

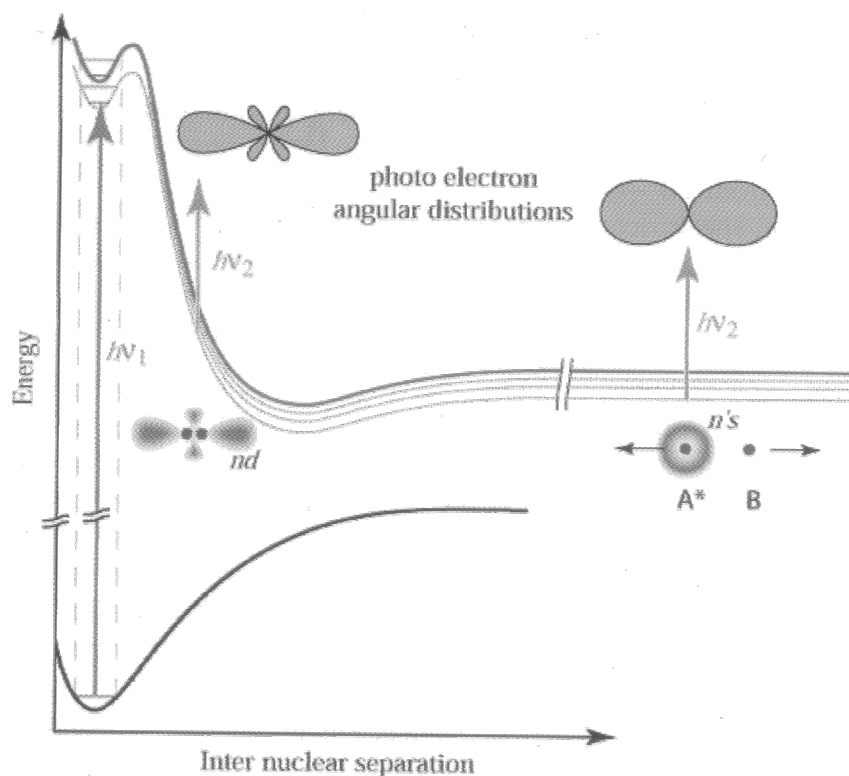
di “rescattering” del primo elettrone emesso oppure per effetto tunnel. Lo studio di questo processo con solamente due fotoni dell’X-Fel offre l’opportunità di svolgere uno studio dettagliato dei meccanismi di doppia ionizzazione. Questo può essere realizzato attraverso la misura in coincidenza dei due elettroni o di un elettrone e lo ione doppiamente carico. Infatti ci si aspetta che le distribuzioni angolari misurate in coincidenza abbiano forme completamente differenti a seconda del meccanismo attivo.

### Esperimenti “Pump-probe”

Lo studio ideale di un processo chimico consiste nella deposizione di una quantità di energia ben definita su uno specifico sito molecolare e quindi nell’osservazione del sistema mentre evolve verso i suoi prodotti finali. I periodi tipici delle vibrazioni sono nell’intervallo 20-100 fs, perciò una spettroscopia con risoluzione al fs permette di osservare l’evoluzione della struttura elettronica nella molecola a causa del moto nucleare. In un esperimento “pump-probe” si può seguire l’evoluzione del processo di dissociazione, ottenendo così informazioni dettagliate sullo stato di transizione e sulla natura delle barriere di potenziale che determinano il cammino di una reazione chimica. Questi esperimenti, usando l’X-FEL in combinazione con dei laser nel visibile o UV, estendono ad energia più elevata il lavoro pionieristico nel settore della “femtochimica” di A.H. Zewail [3]. Il vantaggio di usare raggi X è legato alla possibilità di eccitare shell interne di un particolare atomo della molecola, aggiungendo così agli studi precedenti una migliore localizzazione e selettività nel trasferimento energetico. Fino ad oggi gli studi della fotodissociazione e della frammentazione ionica con diverse tecniche, in cui i diversi frammenti vengono osservati singolarmente o in coincidenza temporale, hanno rivelato solo i prodotti finali del processo dopo che la dissociazione è già completata. Questo significa ottenere una visione del processo che deriva dalla sovrapposizione mediata nel tempo di informazioni che provengono sia dal sistema molecolare che da quello ad atomi separati [17]. Alcuni esperimenti recenti hanno permesso di osservare in alcune situazioni favorevoli la competizione tra il rilassamento molecolare e la dissociazione rivelando l’emissione caratteristica dei prodotti già separati [18,19].

L’avvento di una sorgente pulsata di raggi X con impulsi brevi con una durata di qualche decina di fs permette di progettare esperimenti in cui il processo di dissociazione/frammentazione è seguito nel suo evolversi. Infatti un impulso del X-FEL può essere usato per eccitare un elettrone da una shell interna, mentre l’impulso ritardato di un laser può venire utilizzato per seguire l’evoluzione del sistema lungo la curva di potenziale dissociativa. Un esempio relativo all’eccitazione della molecola di O<sub>2</sub> ad uno stato Rydberg e la seguente fotoionizzazione lungo la curva di dissociazione

proposto per il Fel di Bessy [20] è mostrato in figura 2.9. In questo esempio le diverse forme della distribuzione angolare dei fotoelettroni sono utilizzate per ricostruire i cambiamenti della configurazione elettronica dell'orbitale Rydberg durante la dissociazione. Questi esperimenti possono fornire informazioni uniche sul processo stesso di separazione. L'importanza di questo studio consiste nel fatto che la dissociazione è l'inverso del processo della formazione del legame molecolare nei processi di collisione reattiva.



**Fig.2.9 : Rappresentazione schematica delle curve di energia potenziale molecolare dello stato fondamentale e di quello eccitato. Sono mostrate anche le distribuzioni angolari dei fotoelettroni prodotti nella fotoionizzazione della molecola/atomo a causa dall'impulso di "probe" [20].**

### Spettroscopia di cluster supportati

Materiali di dimensioni nanometriche esibiscono spesso nuovi fenomeni che possono essere attribuiti non solo alla struttura ed al tipo di legame, ma anche al confinamento quantistico. I cluster sono le strutture ideali per connettere le informazioni ottenibili in fase gassosa a quelle di stato solido [21] . L'interesse per tali sistemi sta indirizzando l'attività scientifica verso lo studio di aggregati debolmente legati di molecole, atomi, e/o ioni di varia composizione e dimensione, complessi molecolari d'interesse per settori che si estendono dalla chimica fisica dell'atmosfera e

l'inquinamento, alla catalisi, microelettronica, materiali di cluster assemblati, e complessi con legami idrogeno di molecole biologiche [22]. La dinamica dell'eccitazione/riassorbimento elettronico in complessi a più atomi, i processi di ionizzazione associati con tali cluster possono aiutare a capire la dinamica di formazione e i meccanismi di crescita di vari materiali su scala nanometrica.

Il tipo di legame, le proprietà molecolari ed ottiche e la reattività di sistemi su scala nanometrica sono normalmente studiati in campioni supportati da un substrato. Le caratteristiche chimiche dei cluster supportati dipendono dalla morfologia, dallo stato di ossidazione, dalle proprietà del supporto come i difetti strutturali e il comportamento redox, ma sono anche correlate alle dimensioni del cluster. L'attività di promozione catalica, la conduttività elettrica, la risposta ottica e il magnetismo sono fortemente dipendenti dalle dimensioni [23-25] e lo studio ideale di tali proprietà può essere svolto solamente su cluster selezionati in massa. Purtroppo le tecniche convenzionali di indagine, come la fotoemissione, la spettroscopia di assorbimento e la diffrazione da superficie, anche se realizzate con le sorgenti di radiazione di terza generazione ad alta brillantezza, non sono adatte per lo studio di campioni a densità estremamente bassa come i cluster selezionati in massa. La ricerca su tali sistemi è possibile solamente con la radiazione dei FEL, che grazie all'alta brillantezza ed al range energetico associati alla possibilità di variare con continuità la lunghezza d'onda sono indubbiamente lo strumento ideale per lo studio delle shell interne di cluster selezionati in dimensione, fornendone una caratterizzazione strutturale, chimica, magnetica e dinamica. Inoltre la risoluzione temporale sulla scala dei fs disponibile con gli impulsi dell'X-FEL è indispensabile per studiare la dinamica sulla scala dei tempi delle vibrazioni nucleari.

La fotoemissione nei raggi X di cluster omo- o etero-atomici supportati su substrati opportunamente selezionati permette di discriminare atomi di superficie ed atomi di bulk attraverso l'osservazione degli shift dei livelli di core degli atomi che occupano siti differenti nel cluster. In questo modo si può evidenziare la struttura del cluster e la sua evoluzione con l'aumento della dimensione.

L'adsorbimento di piccole molecole su cluster metallici è importante per la catalisi ed altri processi tecnologici, come la produzione di sensori di gas. L'adsorbimento preferenziale su uno specifico sito del cluster, il trasferimento di carica a causa dell'adsorbimento, l'ibridizzazione degli orbitali della molecola adsorbita con il metallo e la modifica della geometria del cluster dopo l'adsorbimento possono essere studiati attraverso la spettroscopia dei livelli di core sia dell'adsorbato che del metallo. Inoltre la regione del continuo sopra la soglia di ionizzazione interna studiata attraverso misure di spettroscopia EXAFS può essere utilizzata per stimare la lunghezza di legame adsorbato-cluster.

La struttura temporale della radiazione FEL in combinazione con una sorgente esterna laser ad impulsi ultracorti permette di seguire le reazioni di formazione e rottura di legami sulla scala dei

tempi dei femtosecondi. In un tale schema l'impulso ottico è utilizzato per eccitare i costituenti del cluster e l'impulso dell'X-FEL ritardato per campionare la dinamica di reazione attraverso la ionizzazione di shell interne. Inoltre i rilassamenti di carica ed energia nel cluster metallico/adsorbato possono essere osservati con una risoluzione temporale del fs [26-29]. I canali di dissipazione e la dinamica di rilassamento possono essere studiati usando una configurazione pump-probe con un ritardo variabile con un impulso laser ottico breve per fotoeccitare il sistema o un impulso breve nell'infrarosso per scaldare il cluster.

Un diverso aspetto dell'interazione di cluster con impulsi di una sorgente ad alta brillantezza consiste nella possibilità di indurre eccitazioni a più elettroni o processi di ionizzazione multipla. Nei sistemi molecolari sottoposti a campi molto intensi è possibile la perdita di più elettroni, producendo in questo modo ioni molteplici carichi. Quando nel cluster si generano più centri carichi, la repulsione delle cariche produce la frammentazione della specie (esplosione Coulombiana) [30,31]. La dinamica dell'accoppiamento di una radiazione ad alta intensità e un cluster e l'evoluzione temporale di massa ed energia possono essere seguiti ancora adottando una configurazione di pump-probe con diverse lunghezze di impulsi, ritardi temporali ed energia del fotone. In questo modo si ottengono informazioni sulla dinamica a molti elettroni, ionizzazioni di core multiple, e processi transienti in questi sistemi di dimensione finita.

## **Bibliografia**

1. "VUV and Soft X-ray photoionization" U. Becker and D.A. Shirley Ed.s, Plenum Press , New York 1996
2. "Chemical Applications of Synchrotron Radiation", K.T. Sham Ed., World Scientific , 2000
3. A.H. Zewail, *Angew. Chem. Int. Edit.* **39** , 2587 (2000)
4. H. Reisler and C. Wittig in "Photodissociation and Photoionization", K.P. Lawley Ed., 1985 John Wiley& Sons Ltd., p. 1
5. S. A. Novikov and A. N. Hopersky *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **33**, 2287 (2000)
6. A. L'Huillier and G. Wendin *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **20**, L37 (1987)
7. L. Vegh and J. H. Macek *Phys. Rev.* **A50**, 4031 (1994) ; L. Vegh *Phys. Rev.* **A50**,4036 (1994)
8. S.A. Sheinermann and V. Schmidt *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32**, 5205 (1999)
9. N. Scherer, H. Lörch, T. Kerkau and V. Schmidt *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4615 (1999)
10. S. Rioual, B. Rouvellou, L. Avaldi, G. Battera, R. Camilloni, G. Stefani and G. Turri *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1470 (2001)
11. J. Viefhaus, G. Snell, R. Hentges, M. Wiedenhöft, F. Heiser, O. Gessner and U. Becker *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1618 (1998)



12. S. Rioual, B. Rouvellou, L. Avaldi, G. Battera, R. Camilloni, G. Stefani and G. Turri Phys. Rev. **A61**, 044702 (2000)
13. J.S. Briggs and V. Schmidt J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys. **33**, R1 (2000)
14. G.C. King and L. Avaldi J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys. **33**, R (2000)
15. Th. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, F. Afaneth, G. Urbasch, M. Vollmer, H. Giessen and R. Dörner Phys. Rev. Lett. **84**, 443 (2000)
16. R. Moshhammer, B. Feuerrstein, W. Schmitt, A. Dorn, C.D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann and W. Sandner Phys. Rev. Lett. **84**, 447 (2000)
17. R. Feifel, F. Burmeister, P. Salek, M.N. Piancastelli, M. Bäessler, S.L. Sorensen, C. Miron, H. Wang, I. Hjelte, O. Björneholm, A.N. d. Brito, F.K. Gelmukhanov, H. Ågren and S. Svensson Phys. Rev. Lett. **85**, 3133 (2000)
18. P. Morin and I. Nenner Phys. Rev. Lett. **56**, 1913 (1986)
19. P. Bolognesi, D.B. Thompson, L. Avaldi, M.A. MacDonald, M.C.A. Lopes, D.R. Cooper and G. C. King Phys. Rev. Lett. **82**, 2075 (1999)
20. Visions of Science : The Bessy SASE-FEL in Berlin-Adlershof, 2001, pg.78
21. "The physics and chemistry of clusters", Proceedings of Nobel Symposium 117  
Visby, Sweden 27 June - 2 July 2000, ed. by Eleanor E B Campbell (Göteborg University & Chalmers University of Technology, Sweden) & Mats Larsson (Stockholm University, Sweden)
22. Wolfgang Christen and Uzi Even Eur. Phys. J. **D 9**, 29 (1999).
23. R.S. Berry, V. Bonacic-Koutecký, Th. Leisner, J. Manz, B. Reischl-Lenz, H. Ruppe, S. Rutz, E. Schreiber, St. Vajda, R. de Vivie-Riedle, S. Wolf and L. Wöste, Adv. Chem. Phys. **101**, 101(1997).
24. C. Binns<sup>1</sup>, S.H. Baker, M.J. Maher, S.C. Thornton, S. Louch, S.S. Dhesi and N.B. Brookes, Eur. Phys. J. **D 16**, 189-192 (2001)
25. S. Wolf, G. Sommerer, S. Rutz, E. Schreiber. T. Leisner and L. Woste, Phys. Rev Lett **74**, 4177 (1995)
26. M. Hartmann, A. Heidenreich, J. Pittner, V. Bonacic-Koutecky and J. Jortner, J. Chem. Phys. A **102**, 4069 (1998)
27. V. Stert - W. Radloff - C.P. Schulz - I.V. Hertel, Eur. Phys. J. **D 5**, 97
28. Hess H, Asmis KR, Leisner T, Woste L, Eur. Phys. J. **D 16**,145 (2001)
29. L. Woste, OPTICA APPLICATA **29** ,543 (1999)
30. I. Last and J. Jortner, Phys. Rev. A **62**, 13201-2 (2000)
31. I. Last, I. Schek and J. Jortner, J. Chem. Phys. **107**, 6685 (1997).

### 2.3.3 Ottica non lineare

L'ottica non lineare è un campo ben radicato nell'ambito del visibile e dell'infrarosso ed ha applicazioni sia negli studi fondamentali che nelle realizzazioni industriali. La sua crescita si è basata in gran parte sullo sviluppo dei laser ottici. Ci si attende un analogo percorso nel campo dei raggi X molli grazie alla sorgente SPARX che rende disponibile una radiazione estremamente coerente con alte densità di potenza. Entrambe queste proprietà sono richieste per sfruttare effetti ottici non lineari, la prima per ottenere il controllo della fase nel fenomeno osservato e la seconda per poter raggiungere il regime non lineare.

Le proprietà specifiche dei raggi X molli che rendono interessante la loro applicazione nell'ottica quantistica sono l'alta energia dei fotoni, che facilita la rivelazione del singolo fotone con alta efficienza quantica e basso rumore ed il valore alto del momento del fotone che consente di raggiungere regioni ben distinte nello spazio delle fasi nell'interazione fotone materia.

Il FEL offrirà una struttura temporale con impulsi di circa 100 fs di durata, che sono 1000 volte più brevi di quelli disponibili dalle sorgenti di radiazione di sincrotrone di terza generazione. Questa è la scala temporale in cui hanno luogo i processi elementari delle reazioni chimiche e di alcune transizioni di fase. Gli impulsi ultracorti di raggi X molli emessi dal FEL potranno essere utilizzati per ricavare informazioni sulla dinamica di reazioni chimiche con risoluzione su scala atomica e sensibilità alle specie chimiche.

#### Effetti coerenti a multifotoni.

Le alte intensità ottenibili dalla focalizzazione della radiazione emessa da SPARX promette alcune nuove sfide ed apre nuove opportunità nello studio degli effetti non lineari dai livelli elettronici interni degli atomi. Mentre per la spiegazione del comportamento non lineare prodotto nella

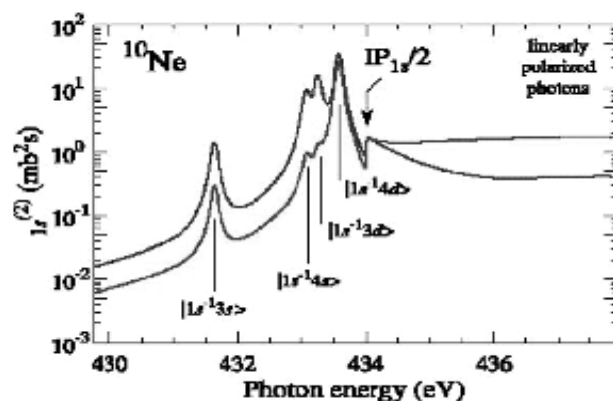


Fig. 2.10: La sezione d'urto di eccitazione/ionizzazione a due fotoni del Ne 1s calcolata per due fotoni polarizzati linearmente, considerando gli effetti di rilassamento dell'atomo dovuti alla creazione della buca. Con (curva rossa) e senza (curva blu) rilassamento. Nella figura sono riportati gli stati finali discreti (1).

materia dai laser ottici è stato utilizzato il modello del singolo elettrone attivo, nel caso dei raggi X molli i processi a molti elettroni giocano un ruolo cruciale rendendo l'interpretazione sempre più difficile. Per questa ragione è necessario ricercare un effetto non lineare semplice, da utilizzare come un facile e affidabile strumento diagnostico per determinare le proprietà temporali del fascio. Probabilmente il fenomeno fisico più accessibile da utilizzare è la ionizzazione a due fotoni degli atomi, poiché la natura semplice della struttura atomica evita qualsiasi ulteriore complicazione dovuta ai processi di danneggiamento prodotti negli aggregati e nella materia condensata dall'alta densità di energia che viene scaricata sul campione in un singolo impulso del laser. Il processo di fotoionizzazione è un processo non risonante, cosicché la lunghezza d'onda esatta del X-FEL è relativamente importante. Il processo di fotoionizzazione ha anche una impronta molto semplice e facilmente osservabile: l'emissione di raggi X caratteristici dell'atomo ad un'energia maggiore di quella del FEL prova l'avvenuto assorbimento coerente di due fotoni dal fascio laser.

Questo effetto potrebbe essere osservato anche con efficienza ridotta ed in presenza di un segnale di fondo di entità rilevante. Un'altra evidente manifestazione dell'evento è la presenza negli spettri fotoelettronici di elettroni Auger caratteristici con energie cinetiche ben definite che dovrebbero originare dalla presenza di lacune interne create dai processi di assorbimento o ionizzazione a due fotoni. Le sezioni d'urto dei processi a due fotoni sono state recentemente calcolate per i gas rari [1,2].

In figura 2.10 si mostra, per esempio, la sezione d'urto di eccitazione/ionizzazione a due fotoni dal guscio K del Ne ad energie del fotone di circa la metà dell'energia di ionizzazione dello strato K del Ne,  $IP(1s) = 870.2$  eV. Per una densità del mezzo assorbente di  $10^{11}$  atomi/cm<sup>3</sup> e per un fuoco di  $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$  della radiazione generata dal FEL, sono prevedibili 1000 ionizzazioni al

secondo dal livello 1s del Ne. La creazione di una buca K può essere confermata chiaramente dalla presenza del conseguente elettrone Auger KLL a energie comprese nell'intervallo di energie cinetiche tra 730-810 eV, che è ben oltre le energie utilizzate per ionizzare, e studiarne la dipendenza in intensità in funzione dell' energia del fotone, così da provare le predizioni teoriche, specialmente per quel che riguarda l' influenza del rilassamento.

Si può prevedere la fotoionizzazione a due fotoni dal guscio L in kripton atomico con la soglia per questa transizione vicino a 850 eV. La presenza di questo effetto può essere rilevato tramite la fluorescenza nei raggi X o l' emissione Auger dagli stati  $n = 3$  a quelli  $n = 2$ , a un' energia di circa 1.5 keV. Questa è in una regione ben al di sopra di qualsiasi energia del fotone o dell'elettrone che può essere prodotto dall'assorbimento a singolo fotone o dalla diffusione del fascio di eccitazione prodotto da SPARX. La fluorescenza X e la presenza dell'elettrone Auger sono quindi una chiara dimostrazione dell'evento. Tuttavia deve essere minimizzato il background di fotoni ad energia più alta (dal terzo ordine del laser ad elettroni liberi e dall' emissione spontanea). La sezione d'urto di assorbimento a due fotoni (1) può essere stimata considerando che gli elementi di matrice implicano due accoppiamenti in approssimazione di dipolo divisi da un termine di sfasamento.

$$W_{i,f}^{(2)} = \frac{2\pi}{h} \left( \frac{e}{m} \right)^4 \left( \frac{2\pi h}{\omega_1 n_1^2} \right) \left( \frac{2\pi h}{\omega_2 n_2^2} \right) \frac{N_1 N_2}{V^2} \cdot \left| \sum_n \frac{\langle f | e_1 \cdot p | n \rangle \langle n | e_2 \cdot p | i \rangle}{E_n - E_i - h\omega_1} + \frac{\langle f | e_2 \cdot p | n \rangle \langle n | e_1 \cdot p | i \rangle}{E_n - E_i - h\omega_2} \right|^2 \cdot \delta(E_f - E_i - h\omega_1 - h\omega_2) \quad (1)$$

Dove  $i, f$  sono gli stati iniziali e finali,  $n$  è lo stato intermedio e con  $e_{1,2}$  rappresentiamo il vettore di polarizzazione. Da un impulso di radiazione emesso da SPARX si stimano  $2 \times 10^5$  assorbimenti per atomo o circa due milioni di questi eventi anomali per singolo impulso per una consistenza del bersaglio di  $10^{11}$  atomi. Gli eventi potrebbero essere rilevati attraverso il canale di decadimento Auger con uno spettrometro per elettroni a dispersione di energia o attraverso il decadimento radiativo utilizzando un monocromatore a reticolo. Benché il rapporto di efficienza del canale radiativo verso il decadimento Auger sia circa 0.02 per il guscio L nel Kr, semplici rivelatori a stato solido possono essere impiegati per rilevare la radiazione. Per il decadimento radiativo, assumendo un' efficienza tipica limitata dall'accettanza di  $10^4$ , dovremmo essere in grado di rilevare quattro fotoni per impulso laser. Per i canali Auger, assumendo un'efficienza limitata dall'accettanza di  $4 \times 10^5$ , dovrebbe consentire di rilevare 80 elettroni per impulso laser. Con il raggio focalizzato, il tasso di ionizzazione a due fotoni, che è proporzionale al quadrato del numero

di fotoni per unità di volume, aumenterebbe fino a circa  $10^8$  volte. Tuttavia, si deve osservare che nell'assorbimento a due fotoni ci si attende di osservare delle strutture risonanti le cui regole di selezione sono  $\Delta\lambda = 0, \pm 2$ . In Kr l'assorbimento a due fotoni dal guscio L promuoverà gli elettroni a stati finali np, nf e questi avranno elettroni Auger caratteristici ad energie lontane dall'energia del fotone. Queste strutture risonanti possono essere importanti per applicazioni future dato che il tasso di assorbimento non lineare può superare il tasso di assorbimento a singolo fotone per le intensità citate.

L'assorbimento a due fotoni risulta amplificato ogniqualvolta la transizione allo stato virtuale intermedio  $n$  si avvicina a quella ad uno stato discreto del sistema come si può dedurre dalla (1). Queste condizioni di amplificazione si possono ottenere attraverso un'opportuna scelta dei parametri di emissione della sorgente FEL. La struttura risonante nell'assorbimento a due fotoni è ben nota per gli stati di valenza, con un accrescimento della sezione d'urto del processo di molti ordini di grandezza. Analogo effetto è ipotizzabile ed è stato calcolato per le transizioni da stati interni nel neon atomico [1]. Le due risonanze dallo stato 1s, che implicano passaggi intermedi a 2p, 3p, 4p stati nel neon, sono situate tra 840 e 870 eV, è previsto diano effetti da 2 a 15 ordini di grandezza sopra la base non risonante di  $10^{-55}$  cm<sup>4</sup> s. Il tasso di assorbimento a due fotoni aumenterebbe in proporzione alla sezione d'urto e subirebbe una riduzione a causa dell'incongruenza della larghezza di banda passante della radiazione FEL con la forma di riga della risonanza. Per queste transizioni, l'impronta caratteristica dell'assorbimento a due fotoni sarebbe la presenza di fotoelettroni all'energia cinetica appropriata, che, a differenza delle transizioni non risonanti è vicino all'energia del fotone.

Se la ionizzazione a due fotoni potesse essere rilevata in atomi in fase gassosa, si potrebbe sfruttare questo effetto per preparare esperimenti di autocorrelazione o altri metodi recentemente proposti [3] che, in analogia con il caso visibile e infrarosso, potrebbero essere utilizzati per un efficace strumento per misurare la durata e le caratteristiche temporali degli impulsi ai femtosecondi prodotti dalla sorgente SPARX.

### Generazione di Frequenze Somma (SFG) e di Seconda Armonica (SHG)

Il termine al secondo ordine nell'intensità del campo della polarizzabilità del mezzo è responsabile della produzione di radiazione alla frequenza somma nel caso di due intensi fasci laser contemporaneamente presenti nel campione. L'effetto dell'interazione è in grado di produrre nel materiale una radiazione a  $\omega_1 + \omega_2$  essendo  $\omega_1$  e  $\omega_2$  la radiazione dei due fasci in ingresso. A causa della natura dell'interazione l'effetto è individuabile solo in mezzi non centrosimmetrici. In anni

recenti questa tecnica è diventata uno strumento spettroscopico potente nell'indagine sulle proprietà elettroniche e strutturali delle superfici solide, degli adsorbati e delle interfacce sepolte. Infatti, a causa della mancanza di simmetria di inversione generata dal troncamento della periodicità traslazionale, anche in un materiale centrosimmetrico l'effetto è permesso alla superficie. La sorgente di segnale è quindi localizzata nella regione di superficie, permettendo la descrizione dei cambiamenti di proprietà di quest'ultima indotte dall'interazione con atomi o molecole, dalla formazione di interfacce o da transizioni di fase di superficie. Sperimentalmente due raggi laser sono messi in interazione all'interfaccia e il segnale prodotto alla frequenza somma viene registrato al variare della frequenza di uno dei laser [4]. Attualmente, questi metodi si applicano allo studio delle vibrazioni molecolari di adsorbati e/o molecole che reagiscono in ambiente di gas sotto pressione, utilizzando i laser alle frequenze appropriate disponibili a tutt'oggi. Finora non è stato possibile eseguire esperimenti simili utilizzando eccitazioni da stati elettronici interni a causa della mancanza di laser che operino tra 200-700 eV di energia del fotone.

L'estensione nei raggi X molli di esperimenti SFG da superfici manipolate dovrebbe utilizzare un laser convenzionale nella regione del UV insieme con il fascio del XUV-FEL. I due sistemi laser dovrebbero produrre un segnale alla frequenza somma che varia al variare della frequenza del XUV-FEL nell'approssimarsi ad una soglia profonda di assorbimento. Il segnale SFG è generato preferenzialmente all'interfaccia studiata [5,6], a causa delle regole di selezione sulla simmetria e produrrà così informazioni sulle eccitazioni profonde presenti all'interfaccia con sensibilità elementale.

Le eccitazioni profonde sono localizzate su specifici atomi e possono sondare così il legame delle molecole con superfici al livello di sito atomico. Poiché gli esperimenti permettono di eseguire tali misure anche in ambiente controllato, i risultati avranno certamente un impatto importante sulla comprensione dell'interazione di molecole con superfici in condizioni di reazione. Rimane aperto l'interrogativo sul danno prodotto sul sistema in studio dagli alti flussi di fotoni disponibili dal FEL. Il flusso di fotoni emessi dal FEL al massimo del picco di potenza a 500 eV di energia è stimato in circa  $2\text{-}5 \text{ GW/cm}^2$  e risulta dello stesso ordine di grandezza della potenza depositata in un esperimento tipico SFG di vibrazioni molecolari su superfici utilizzando sistemi laser convenzionali. Quindi l'uso di circa  $2 \text{ GW/cm}^2$  (per 20ps di durata) non produrrebbe danneggiamenti della superficie [4].

Un caso speciale dello SFG è la tecnica della Generazione di Seconda Armonica (SHG) che utilizza un raggio laser intenso dell'energia  $h\nu_0$  per produrre un fascio coerente di fotoni all'energia  $2h\nu_0$ . La SHG è un processo non risonante ed è prodotto dall'interazione della radiazione con un mezzo non-centrosimmetrico. Nella spettroscopia ottica laser questo metodo è stato applicato

ampiamente per produrre radiazione a energia più alta del fotone di irraggiamento, partendo dalla emissione fondamentale di un laser a lunghezza d'onda fissa. L'effetto di generazione di armonica nei raggi X sarebbe di vantaggio per almeno due ragioni: potrebbe essere utilizzato per misure di correlazione di intensità ed in caso di efficienza sufficientemente alta, potrebbe essere utilizzata come sorgente di fotoni a lunghezza d'onda più corta per gli esperimenti. A causa della natura non lineare del processo attraverso cui vengono prodotti gli impulsi di SHG, questi risulteranno più corti temporalmente rispetto agli impulsi di pompa, il che fornisce una possibilità molto attraente per produrre raggi X impulsati nella scala temporale degli attosecondi.

## **Bibliografia**

1. S.A. Novikov and A.N. Hopersky, *J. Phys. B: At, Mol. Opt. Phys.* **33**, 2287 (2000)
2. S.A. Novikov , TESLA Technical Design Report, V-30, March 2001
3. E.S. Toma, H.G. Muller, P.M. Paul, P. Breger, M. Cheret, P. Agostini, C.L. Blanc, G. Mullot, and G. Cheriaux, *Phys. Rev. A* **62**, 061801 (2000)
4. T. Dellwig, G. Rupprechter, H. Unterhalt, H.-J. Freund, "Bridging the Pressure and Materials Gaps: High Pressure Sum Frequency Generation Study on Supported Pd Nanoparticle", *Phys. Rev. Lett.* **85**, 776 (2000)
5. N. Bloembergen, P.S. Persham, "Light Waves at the Boundary of Nonlinear Media", *Phys. Rev.* **128**, 606 (1962)
6. Y.R. Shen, "The Principles of Non-linear Optics", Wiley, New York (1984)

## 2.3.4 Materia condensata

### Introduzione

Negli ultimi tre decenni la spettroscopia di assorbimento e fotoelettronica con radiazione di sincrotrone nella regione dei raggi X molli (100-1000 eV) è stata utilizzata diffusamente per studiare i legami chimici e le strutture di banda di valenza. Questa regione di energia include la cosiddetta "finestra dell'acqua", che è molto utile per studi biologici, poiché il coefficiente di assorbimento delle proteine è circa un ordine di grandezza maggiore di quello dell'acqua, fornendo un meccanismo di contrasto basato sulle "impronte digitali chimiche" e senza la necessità di ricorrere a tecniche di fissazione delle cellule biologiche. I raggi x prodotti da sorgenti convenzionali e sincrotroni sono già utilizzati per sondare la struttura di molecole biologiche, ma entrambi i sistemi sono limitati dalla intensità e dalla durata dell'impulso della loro radiazione. Gli impulsi ad alta intensità del nuovo X-FEL permetteranno di superare entrambe queste limitazioni.

Molti studi riguardano la spettroscopia di elettroni provenienti dai gusci interni dell'atomo, e permettono di rivelare dettagli dello stato di legame chimico di un atomo. Molte ricostruzioni di superficie sono state risolte con tale tecnica. È stata anche ottenuta una buona caratterizzazione delle proprietà elettroniche di nuovi materiali (carburo di silicio, superconduttori ad alta temperatura), sistemi a bassa dimensionalità (con materiale organico o inorganico) e sistemi diluiti, come droganti in semiconduttori o impurezze magnetiche in superconduttori convenzionali. In tutti questi sistemi è facile prevedere un grosso impatto della una nuova sorgente X-FEL, soprattutto per le sue caratteristiche uniche di altissima brillantezza, durata degli impulsi e completa coerenza trasversa. Saranno possibili migliori risoluzioni spaziali (importanti negli studi di sistemi a bassa dimensionalità e nella microscopia), migliore risoluzione spettrale e temporale (ideale per studi di ricostruzioni superficiali e di dinamica dei sistemi), migliore grado di coerenza (fondamentale, ad esempio, per studi di sistemi più o meno disordinati e per ottenere alto contrasto nella microscopia).

### Misure di X-ray Photon Correlation Spectroscopy su superconduttori

Quando un fascio di luce coerente viene diffuso da un sistema disordinato da luogo ad un diffattogramma caotico (speckle) dovuto alla correlazione tra le posizioni dei differenti centri diffusori. Nel caso di un sistema disordinato dinamico (centri diffusori mobili) il segnale di speckle cambierà in funzione del tempo. Questo fenomeno, correntemente impiegato con luce visibile utilizzando dei laser come sorgenti [1], è alla base della tecnica Photon Correlation Spectroscopy

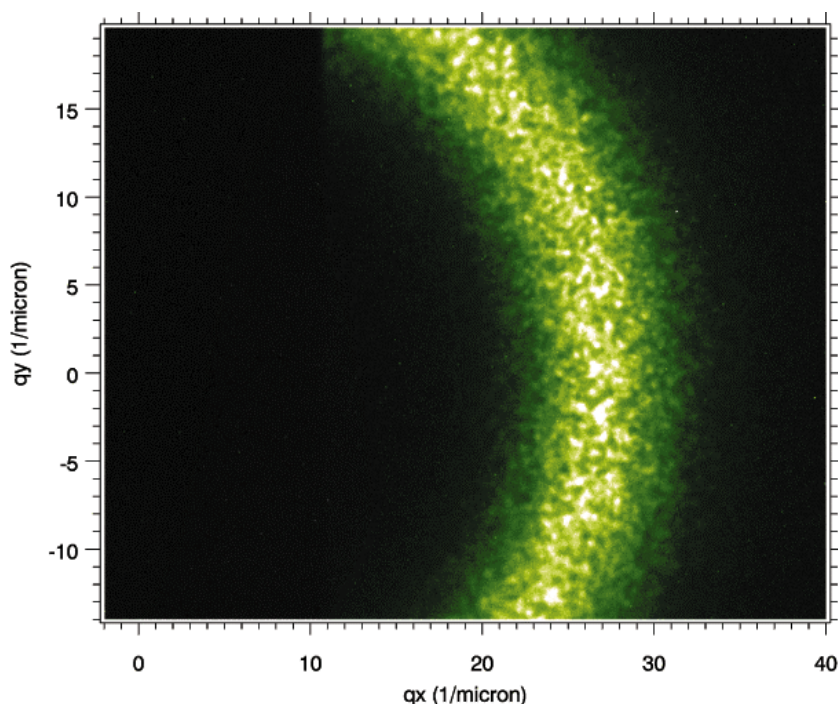


(PCS). Recentemente, l'uso di sorgenti di luce di sincrotrone di terza generazione, che possono emettere un moderato flusso di radiazione X coerente, hanno fornito la possibilità di effettuare esperimenti che richiedono l'impiego di una radiazione con le necessarie caratteristiche di coerenza.

L'uso di raggi X nella tecnica PCS (X-ray Photon Correlation Spectroscopy, XPCS) permette di sondare un sistema con risoluzione atomica. Nel campo dei raggi X duri tale tecnica viene impiegata in vari settori della ricerca: fenomeni di diffusione nei liquidi (colloidi, polimeri, fusione, etc.), studi di transizione di fase nelle leghe, studio della dinamica dei domini magnetici nei materiali magnetici [2-4]. Nella figura 2.11 viene riportato come esempio lo speckle registrato su un materiale magnetico. L'uso di raggi X molli ( $\lambda=10\text{\AA}$ ) è stato impiegato in letteratura [2] nello studio di sistemi con ordine a medio raggio. D'altro canto, studi dinamici estremamente veloci non sono possibili con le attuali sorgenti di luce di sincrotrone a causa della struttura temporale del fascio di elettroni. L'uso di laser ad elettroni liberi (FEL), anche nella regione dei raggi X molli, amplierà notevolmente l'applicabilità della XPCS. Nel caso la sorgente sia accordabile in energia (più precisamente nel campo delle soglie L dei metalli di transizione del IV periodo) si può prendere in considerazione l'uso della diffusione magnetica risonante per l'osservazione della dinamica dei domini magnetici. La fattibilità di questa classe di esperimenti è già stata dimostrata in letteratura [4]. Il miglioramento atteso del segnale di speckle dovuto all'alto flusso di radiazione coerente e la peculiare struttura temporale della sorgente FEL permetterà l'accesso allo studio di dinamiche ultraveloci.

Tale estensione della scala temporale potrebbe essere applicata nell'esplorazione dei fenomeni di fluttuazione di carica nei solidi. Questo risulta essere un campo di studio di crescente interesse sia da un punto di vista teorico che sperimentale. Infatti, negli ultimi anni vari nuovi effetti sono stati scoperti nei sistemi ad elettroni fortemente correlati. Come esempio si possono prendere in considerazione le fluttuazioni di carica ("stripes") nei superconduttori cuprati ad alta temperatura di transizione. Tali superconduttori sono degli isolanti di Mott drogati, dove il materiale non drogato risulta essere antiferromagnetico; un ordinamento degli spin è stato osservato persino nella fase superconduttiva. Recentemente la diffusione di neutroni ha dimostrato di essere una tecnica di misura efficace per ottenere informazioni sulle instabilità di carica nei superconduttori. L'immagine che ne emerge è quella in cui sono presenti delle regioni con ordine antiferromagnetico separate da regioni in cui vengono confinate le buche provenienti dal drogaggio. Tali strutture appaiono al di sotto di una temperatura critica e nella maggior parte dei cuprati hanno dimostrato una natura dinamica. Il ruolo giocato dalle "stripes" nel meccanismo di superconduzione è attualmente materia di dibattito scientifico. Uno strumento di indagine della dinamica di queste fluttuazioni di carica risulterebbe in una migliore comprensione dei sistemi ad elettroni fortemente correlati. La dinamica

temporale necessaria per questo tipo di esperimenti è compresa tra  $10^{-10}$ s e  $10^{-13}$ s [5]. Il FEL, grazie all'alto flusso di radiazione coerente ed alla particolare struttura temporale, permetterà di osservare la diffusione dalle diverse regioni di carica elettrica. Utilizzando la XPCS dovrebbe essere possibile seguire la dinamica di formazione delle regioni di confinamento delle cariche nelle “stripes” in funzione della temperatura e livello di drogaggio. Infatti, la presenza di impurezze nella struttura cristallina influenza notevolmente la dinamica delle “stripes” ed a certi livelli di drogaggio di opportune impurezze si può arrivare ad un congelamento delle “stripes” stesse [6,7].



**Fig. 2.11** Diffrattogramma magnetico (speckle) registrato presso ESRF su un campione amorfo di  $GdFe_2$  (ref. 4).

Un possibile apparato sperimentale per questo genere di misure dovrebbe essere composto da un monocromatore per raggi X molli ad alta risoluzione [2] accoppiato ad una linea di ritardo [8]. Il campione dovrà essere alloggiato in una camera da ultra alto vuoto che permetta l'incidenza del fascio sia normale che radente. La componente critica di tale apparato risulta essere il rivelatore. In passato sono stati proposti progetti, basati su coppie di impulsi ritardati, impieganti le tecnologie attuali per ottenere risoluzioni temporali dell'ordine di  $10^{-11}$ s. Per intervalli di tempo dell'ordine della decina di fs la tecnologia dei rivelatori è tutta da provare, anche se già esistono progetti in tale direzione [9]. L'idea innovativa sulla quale si basano consiste nello spopolamento della banda di valenza di un semiconduttore per mezzo di un intenso impulso laser della durata di qualche fs, che indurrà l'assorbimento di raggi X monocromatici di energia appena inferiore ad una soglia critica. Il

dispositivo proposto può operare come rivelatore registrando la radiazione X di fluorescenza o l'emissione di elettroni Auger conseguenti all'assorbimento X.

## **Bibliografia**

1. B.J. Berne “*Dynamic Light Scattering With Applications*” John Wiley&Sons, New York, 1976
2. A.C. Price, L.B. Sorensen, S.D. Kevan, J. Toner, A. Poniewierski and R. Holsty, Phys. Rev. Lett. **82**, 755 (1999)
3. G. Grübel, D. Abernathy, T. Thurn-Albrecht, W. Steffen, A. Patkowski, G. Meier and E.W. Fischer, ESRF Newsletter July (1996)
4. J. F. Peters, M.A. De Vries, J. Miguel, O. Toulemonde and J.B. Goedkoop, ESRF Newsletter October (2000)
5. V. Kataev, B. Rameev, B. Buchner, M. Hucker and R. Borowski, Phys Rev. B **55**, R3394 (1997)
6. H.A. Mook, D. Pengcheng, F. Dogan and R. D. Hunt, Nature **404**, 729 (2000)
7. J.M. Tranquada, B.J. Sternlieb, J.D. Axe, Y. Nakamura and S. Uchida, Nature **375**, 561 (1995)
8. J. Arthur, Proc. of the workshop “*Perspectives of X-ray Photon Correlation Spectroscopy*“ June 1996 ESRF, Grenoble.
9. B. Adams, Nuc. Instr. Meth. A **459**, 339 (2001)

## *Sintesi e studio di materiali nanofasici*

Il meccanismo di interazione laser-solido e la dinamica dei processi, nell'ablazione e deposizione di materiali assistita da laser è oggetto di continui studi. Nei processi convenzionali di deposizione via laser si utilizzano laser impulsati al nanosecondo, normalmente a lunghezza d'onda fissa, per promuovere l'ablazione e la crescita di un film. In molti casi tuttavia è desiderabile poter variare una pluralità di parametri. Ad esempio, può essere necessario ottenere un processo di ablazione estremamente localizzato oppure produrre plasmi che presentino densità elevate di ioni altamente eccitati.

La combinazione unica dei parametri offerti dal FEL (lunghezza d'onda accordabile, alta potenza e presenza di impulsi ultracorti) offrirà un'opportunità unica per migliorare la conoscenza dei meccanismi di desorbimento e di deposizione laser. Queste stesse proprietà potrebbero rendere il FEL uno strumento importante per la produzione di materiali nanofasici nuovi ed originali. Lo studio sistematico dell'influenza dei parametri di processo (il ruolo della lunghezza d'onda di eccitazione, l'effetto della durata e della forma dell'impulso, l'influenza della densità di energia) insieme alla possibilità di effettuare la diagnostica “on line” aumenterà le conoscenze di base in

questo campo. La breve durata temporale degli impulsi FEL permetterà inoltre studi di dinamica di processi di dissociazione utilizzando tecniche di pump-probe attraverso la sincronizzazione con un laser esterno al femtosecondo.

Proponiamo di utilizzare le caratteristiche innovative del nuovo FEL per produrre e studiare la crescita di nanostrutture a base di carbonio. Le differenze più significative fra il FEL e i laser da tavolo correntemente usati per produrre nanotubi si possono così riassumere:

- La qualità dell'impulso ultrabreve consente una soglia di ablazione più bassa, un sostanziale minor danneggiamento del target e l'eliminazione del particolato, tipicamente generato da impulsi più lunghi, perché durante l'impulso la profondità di penetrazione dovuta alla conducibilità termica è ridotta.

- L'accordabilità della lunghezza d'onda potrebbe permettere di indirizzare la reazione verso opportuni canali, e quindi opportune specie molecolari.

Ci si aspetta che la combinazione di questi fattori crei condizioni totalmente nuove e flessibili per la crescita di nanotubi. Sarà inoltre possibile studiare l'effetto della sequenza di impulsi (bloccandoli o raggruppandoli selettivamente) sulla crescita dei nanotubi e sulla resa.

Per studiare l'emissione del plasma, si richiederebbe che nell'apparato di crescita siano incorporati strumenti per la diagnostica "on line". Gli spettri saranno misurati in funzione del tempo (ritardo dall'impulso FEL) e in funzione della posizione nel plume. L'interpretazione degli spettri permetterà di stabilire la temperatura del plasma e la velocità del suo fronte di espansione, oltre ad identificare la presenza di specie molecolari sempre con alta risoluzione spaziale e temporale. Un ulteriore obiettivo è la correlazione fra le caratteristiche spettroscopiche del plume e la resa percentuale di nanotubi a parete singola nel deposito.

L'utilizzo "ex situ" di tecniche avanzate di caratterizzazione (SEM, STM, HRTEM, trasporto elettrico, emissione di campo, spettroscopia Raman) permetterà di correlare le condizioni di crescita con le proprietà fisiche.

### Spettroscopia risolta in tempo: pump-probe

Tramite la tecnica di pump-probe (vedi paragrafo 2.2.2) è possibile misurare le variazioni indotte nell'assorbimento o nella riflettività del probe, o indirettamente misurando i prodotti dell'interazione del probe con il campione, come l'emissione di elettroni e/o la generazione di ioni. In entrambi i casi, al fine di poter realizzare una misura di pump-probe è indispensabile soddisfare alcune condizioni:

- Stabilità in ampiezza degli impulsi di pump-probe
- Sincronizzazione tra gli impulsi di pump-probe
- Frequenza di ripetizione degli impulsi

Il grado di stabilità degli impulsi di pump-probe definisce la sensibilità delle misure. Ad esempio fluttuazioni di ampiezza negli impulsi di pump-probe dell'ordine di pochi permille comportano una sensibilità limitata a qualche percento nell'osservazione di variazioni nell'assorbimento e nella riflettività. Queste fluttuazioni di ampiezza possono diventare meno importanti, aumentando così la sensibilità di un altro ordine di grandezza, nel caso vengano osservati i prodotti dell'interazione (rivelazione background-free). Un'altra condizione importante per una misura di pump-probe è la sincronizzazione degli impulsi: infatti occorre determinare la sovrapposizione temporale tra gli impulsi di pump-probe e controllare il ritardo relativo. Molti schemi di pump-probe richiedono l'uso simultaneo di impulsi nella regione spettrale dei raggi X molli e nella regione visibile dello spettro. Al fine di determinare la sovrapposizione temporale degli impulsi occorre sviluppare tecniche di autocorrelazione. La frequenza di ripetizione degli impulsi consente di massimizzare il rapporto segnale/rumore, che aumenta con la radice quadrata della frequenza stessa. Tuttavia una frequenza troppo elevata (superiore ad una decina di MHz) può causare severi problemi in presenza di processi che terminano su stati metastabili con tempi di vita dell'ordine di decine di nanosecondi o più. In questo caso avviene un accumulo continuo di stati con differenti condizioni iniziali, che può alterare la misura.

Lo sviluppo di un sistema di misura versatile di pump-probe deve prendere in considerazione i precedenti punti. Il problema della sincronizzazione può essere risolto derivando gli impulsi nel visibile-infrarosso dalla stessa sorgente laser che viene utilizzata per il fotocatodo. Lo sviluppo di tecniche di cross-correlazione, basate sulla spettroscopia elettronica, può fornire utili strumenti per controllare la sovrapposizione temporale tra gli impulsi di pump-probe. L'effetto delle fluttuazioni in ampiezza può essere ridotto utilizzando una finestra in energia che rifiuti dati acquisiti al di fuori dei limiti di fluttuazione consentiti.

Qui di seguito sono riportati alcuni esempi di esperimenti che possono essere effettuati con tecniche di pump-probe.

### *Pump-probe: superfici e interfacce*

Con la risoluzione temporale del femtosecondo ci si propone di osservare direttamente fenomeni di polarizzazione e localizzazione di portatori di carica in sistemi metallo-semiconduttore

e/o isolante: infatti, mentre nei metalli gli elettroni si comportano in modo simile ad elettroni liberi, nei dielettrici essi tendono ad essere localizzati come polaroni [1]. La localizzazione delle cariche, alle interfacce fra materiali dissimili rimane a tutt'oggi oggetto di studio in gran parte inesplorato. Capire i fenomeni di localizzazione di cariche è importante nella determinazione delle proprietà elettroniche e ottiche dei materiali destinati alle applicazioni e nello sviluppo di nuovi materiali. In questo contesto, la combinazione di tecniche laser al femtosecondo con la fotoemissione a due fotoni risolta in angolo fornisce un'opportunità unica per studiare la dinamica di localizzazione di portatori alle interfacce [2]. In questo caso un impulso di pompa eccita gli elettroni da stati occupati a stati vuoti all' interfaccia e un secondo impulso di sonda estrae gli elettroni eccitati nel vuoto, dove l' energia cinetica dell' elettrone è misurata a diversi angoli. Tale misura permette la determinazione dell' energia di legame e della massa efficace degli elettroni. Inoltre, se gli strati dielettrici sono cresciuti sul substrato metallico, si può esplorare l' evoluzione, durante la crescita layer-by-layer, del potenziale e della struttura elettronica per controllare fenomeni di dinamica e di localizzazione indotta da difetti, droganti o da layers di diverso materiale. Sfruttando un flusso molto intenso di fotoni dalla nuova sorgente X-FEL tale tecnica può essere implementata per estrarre informazioni a livello microscopico, acquisendo immagini dello stato eccitato in funzione del tempo trascorso, ad esempio tramite accoppiamento con un Microscopio a Scansione ad Effetto Tunnel.

Lo studio dei processi ultrarapidi sulle superfici rappresenta un campo della ricerca che ha riscosso un crescente interesse negli ultimi anni sia dal punto di vista teorico che sperimentale. Le prospettive sono particolarmente interessanti per lo studio di processi come la catalisi eterogenea, dove la dinamica dell'interazione fra molecola e superficie è fondamentale per il processo stesso. Tuttavia a differenza di quanto accade nello studio della chimica in fase gassosa o liquida, dove possono essere utilizzate la spettroscopia di pump-probe in assorbimento o riflessione o tecniche più sofisticate al fine di ottenere una visione chiara della dinamica della reazione, le tecniche sperimentali nella scienza delle superfici sono più limitate nella loro capacità di fornire dati direttamente interpretabili. Nel passato sono state utilizzate la spettroscopia di fotoemissione a due fotoni, la generazione di frequenza somma e la spettroscopia Auger risonante per rivelare l'accoppiamento fononico ed elettronico delle molecole con la superficie su una scala di tempi ultrabreve. La misura del foto-desorbimento e la generazione di seconda armonica superficiale sono state utilizzate per rivelare lo stato finale delle reazioni chimiche ed hanno consentito la misura della scala dei tempi complessiva nella quale avviene un processo di desorbimento indotto da un laser al femtosecondo. Tutti questi esperimenti sono limitati dal fatto che le reazioni chimiche, che avvengono alla superficie, non sono osservate direttamente. Una tecnica risolta in tempo consentirebbe di studiare la dinamica molecolare alla superficie. La spettroscopia di fotoemissione risolta in tempo nell'UV è attualmente utilizzata per rivelare le variazioni della banda di valenza di

un composto adsorbito sulla superficie in funzione del tempo [3]. Questo consente di osservare direttamente le variazioni nel legame chimico di una molecola, con una risoluzione di un centinaio di femtosecondi, necessaria per seguire l'intero evolversi della reazione. Nell'esperimento che si propone, un impulso laser di pompa, generato da un laser a femtosecondi nell'infrarosso, viene utilizzato per eccitare una specie molecolare adsorbita alla superficie di un metallo. Utilizzando impulsi di probe nei raggi X molli è possibile rivelare le variazioni nello spettro caratteristico di fotoemissione dalla superficie in funzione del ritardo temporale tra il pump e il probe. Diventa quindi osservabile una variazione nella struttura dei livelli di core e di valenza del complesso molecola-metallo su una scala dei tempi di alcuni centinaia di femtosecondi. Da questo esperimento è possibile ottenere direttamente informazioni circa la chimica che avviene alla superficie come: la formazione e la rottura di legami chimici, la formazione di stadi intermedi di reazione e l'esistenza di prodotti di reazione transienti.

## **Bibliografia**

1. A.L.Shluger and A.M. Stoneham, *J. Phys. Condens. Matter* **5**, 3049 (1993).
2. N.-H. Ge, *et al. Science* **279**, 202 (1998).
3. Lora Nugent-Glandorf *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 193002-1 (2001)

### *Pump-probe: nanostrutture*

La caratterizzazione di nanostrutture a confinamento quantistico si sta rapidamente evolvendo con richieste di analisi sempre più spinte in termini di risoluzione spettrale, temporale e spaziale. Come esempio concreto, si consideri il gran numero di applicazioni per la fotonica e la optoelettronica che riguardano Quantum Dots singoli (con confinamento tridimensionale). Si veda il gran numero di Progetti Europei per lo studio dell'entanglement quantistico per applicazioni di crittografia, o l'applicazione di nanolaser basati su Dots autoaggregati su superfici di semiconduttori (e.g., InAs/GaAs).

Con la presente proposta ci si propone di effettuare uno studio di stati eccitati elettronici di (singoli) Quantum Dots tramite la sincronizzazione di due fotoni generati da una sorgente locale (laser a impulsi ultra-corti nel vicino IR, accordabile) e XFEL. Lo schema di lavoro è simile a quello proposto da Haight, Bokor et al. [1] visibile in figura 2.12.

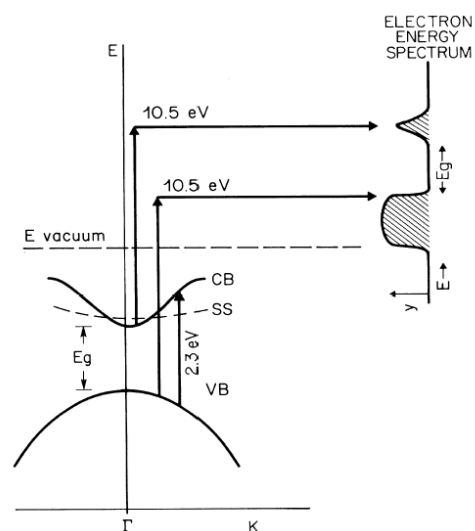
Le caratteristiche della sorgente XFEL permetterebbero: a) di selezionare facilmente singoli dots attraverso il focheggiamento del fascio ad una dimensione di 100nm; b) di ottenere un ragionevole segnale di elettroni fotoemessi in coincidenza con la pompa locale. Se si considerano esperimenti più recenti realizzati esclusivamente con sorgenti locali [2], il rapporto tra il numero di fotoni per impulso del X-FEL rispetto al Ti:zaffiro e' di circa 10 ordini di grandezza ( $10^{25}$  XFEL  $10^{15}$  Ti:Zaffiro). Anche tenendo conto di diverse sezioni d'urto in funzione delle diverse energie in gioco, ci sarà sufficiente margine per un risultato positivo.

I risultati ottenibili saranno in termini di una dettagliata spettroscopia di livelli elettronici per una caratterizzazione di singole strutture quantiche.

Mantenendo fisso lo stato elettronico di vuoto, a cui deve essere posto un rivelatore di elettroni anche di tipo pass-alto (Faraday-cup), o, meglio, un analizzatore tunabile, si può selezionare il punto di partenza aggiustando la riga di emissione del laser locale. Lo sfasamento temporale dei due impulsi permette poi, stato per stato elettronico, di studiare il decadimento temporale con una risoluzione del

**Fig. 2.12 Schema di pump-probe come da [1]**

picosecondo. Altre configurazioni sono ovviamente possibili.



## Bibliografia

1. J. Bokor, R. Haight, R. H. Storz, J. Stark, R. R. Freeman, and P. H. Bucksbaum, Phys. Rev. **B 32**, 3669-3675 (1985) .
2. S. Jeong and J. Bokor, Phys. Rev. **B 59**, 4943-4951 (1999).

## Spettroscopia di emissione di raggi X molli

La spettroscopia di emissione di raggi X molli (XES, soft X-Ray Emission Spectroscopy) è basata su un processo nel quale un elettrone di valenza si ricombina con una buca in un livello di core nei gusci esterni provocata dall'assorbimento di un fotone. Questo è un processo al secondo ordine che contiene tutte le informazioni del processo ottico al primo ordine (X-Ray Absorption Spectroscopy) con la possibilità di seguire i processi di diseccitazione. Se l'eccitazione risuona con la riga di assorbimento di un livello di core la tecnica viene denominata diffusione anelastica risonante di raggi x molli (RIXS, Resonant Inelastic X-Ray Scattering). Studi recenti hanno posto l'accento sul fatto che in questo caso l'eccitazione e la diseccitazione debbono essere considerate



come fuse in un unico processo coerente. Inoltre in regime di eccitazione risonante la risoluzione degli stati finali non è limitata dalla vita media del livello di core come nella spettroscopia di assorbimento.

La resa quantica inferiore all'1% del processo di emissione costituisce un serio limite all'applicazione di questa spettroscopia anche con l'uso di sorgenti di luce di sincrotrone di terza generazione. Il salto di vari ordini di grandezza nella brillantezza media delle sorgenti laser a elettroni liberi costituirà un passaggio importante per portare la spettroscopia di emissione di raggi X molli al livello di altre spettroscopie come quella di assorbimento e fotoemissione, che hanno fornito la base per l'interpretazione della struttura elettronica della materia.

Tra i punti di forza della spettroscopia di emissione di Raggi X molli ricordiamo i seguenti:

#### *Eccitazioni selettive*

L'intervallo di energia dei raggi X molli consente di eccitare, in molti casi, i livelli di core che sono caratteristici dell'atomo assorbitore permettendo di discriminare le varie specie chimiche. Le eccitazioni più importanti per lo studio dei materiali sono i livelli 1s di C, N, O, 2p di Si, 3p e 2p dei metalli di transizione, 3d e 4d delle terre rare. Per queste ultime due classi di elementi la transizione ottica  $p \rightarrow d$  e  $d \rightarrow f$  esplora come stato finale le proprietà delle bande responsabili delle caratteristiche magnetiche.

#### *Sensibilità alle proprietà di volume*

La lunghezza di assorbimento nell'intervallo dei raggi X molli (circa 1000 Å alle soglie 2p dei metalli di transizione) è sufficiente per uno studio delle proprietà di volume ma non per una preparazione agevole di campioni di spessore adeguato per un esperimento di assorbimento in trasmissione. Il metodo più semplice consiste nel registrare la corrente di elettroni secondari emessi (total electron yield) in funzione dell'energia del fotone incidente. Questa metodologia non è però applicabile a classi importanti di materiali quali gli isolanti e i materiali biologici in ambiente umido, e può introdurre effetti di difficile interpretazione in esperimenti che necessitano l'uso di campi elettrici e magnetici.

Inoltre la tecnica XES, misurando i fotoni emessi dal processo di eccitazione, permette di avere come profondità di indagine la lunghezza di penetrazione dei raggi X molli, fornendo informazioni sulle proprietà elettroniche di volume. Lo scarso assorbimento dell'acqua ai raggi X molli (finestra dell'acqua) può facilitare lo studio di campioni in ambiente umido. Inoltre i raggi X emessi non sono sensibili al caricamento dei campioni né a campi elettrici e magnetici esterni.

### *Struttura delle bande*

La tecnica XES è tra le spettroscopie che hanno avuto un ruolo importante nelle prime formulazioni della struttura elettronica della materia anche se è stata successivamente superata dalla fotoemissione che garantisce segnali più intensi e un quadro di interpretazione più diretto.

La tecnica RIXS [1-3] si presenta come perfettamente complementare alla fotoemissione risolta in angolo (ARPES, Angle Resolved Photoemission Spectroscopy) con il vantaggio che essa è svincolata dall'uso del cristallo singolo e può essere eseguita anche con materiali policristallini. Inoltre la tecnica RIXS presenta il vantaggio di essere sensibile al volume, insensibile ai campi elettrici e magnetici ed al caricamento di campioni isolanti, là dove la tecnica ARPES è fortemente limitata.

L'alta brillantezza e le ridotte dimensioni del punto immagine della sorgente sul campione permetteranno di progettare spettrometri che porteranno la risoluzione totale dello spettro RIXS dalle attuali poche centinaia di meV a qualche meV.

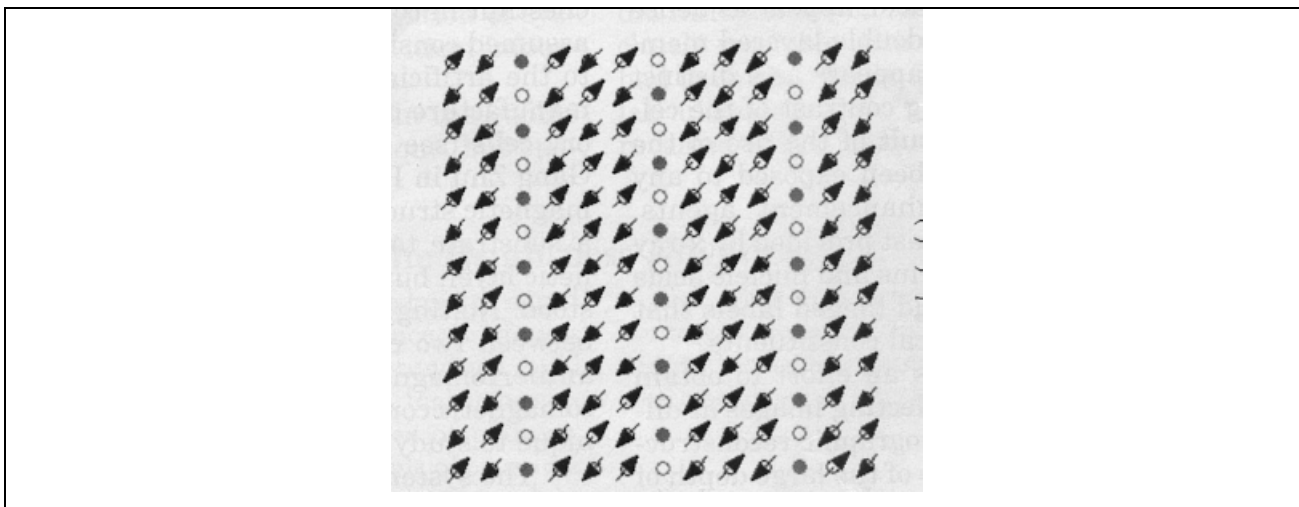
### **Bibliografia**

1. Y. Ma, Phys. Rev. B **49**, 5799 (1994)
2. Y. Ma, N. Wassdahl, P. Skytt, J. Guo, J. Nordgren, P.D. Johnson, J.E. Rubensson, T. Boske, W. Eberhardt, S. D. Kevan, Phys. Rev. Lett. **69**, 2598 (1992)
3. S. Eisebitt, J. Luning, J. E. Rubensson, A. Karl, W. Eberhardt, Phys. Stat. Sol. B **215**, 803 (1999)

### *Sistemi con bassa densità di stati*

Recenti indagini [1] su sistemi ad elettroni fortemente correlati hanno messo in discussione la validità di uno dei più fondamentali paradigmi della fisica dello stato solido: la Teoria del liquido di Fermi. Questa si basa sull'esistenza di quasiparticelle che obbediscono al principio di esclusione e hanno tempi di vita abbastanza lunghi da considerarle come particelle. Questo concetto è limitato a una temperatura di 0 K ed a una regione energetica ristretta intorno al livello di Fermi. La fotoemissione risolta in angolo (ARPES) rappresenta una sonda sperimentale potente per valutare la presenza o l'assenza di comportamento tipo liquido di Fermi. Tuttavia, per fornire una risposta definitiva nell'interpretazione delle strutture elettroniche intorno al livello Fermi [1], tali studi richiedono un'alta risoluzione energetica e quindi un flusso di fotoni eccezionalmente alto (non ottenibile con sorgenti di radiazione di sincrotrone convenzionali). Infatti, una risoluzione energetica totale dell'ordine di 1 meV, che è essenziale per questi studi, può essere ottenuta con l'alta luminosità dell'XFEL e con un monocromatore appropriato. Tale configurazione sperimentale

permetterà un tempo di acquisizione dati accettabile in confronto alle sorgenti di radiazione di sincrotrone attuali. Un aumento del potere risolutivo spettrale è necessario in questi sistemi ad elettroni fortemente correlati per essere in grado di misurare con altissima precisione la larghezza dei picchi negli spettri di fotoemissione. Infatti la dipendenza in energia della larghezza di tali strutture in vicinanza di  $E_F$  indica quanto un materiale si comporta come un liquido di Fermi. Inoltre, studi più approfonditi della superficie di Fermi sono di importanza fondamentale per la determinazione dell'origine della superconducibilità ad alta temperatura. Esperimenti effettuati su composti a base di rame [2] hanno suggerito un collegamento fra bande monodimensionali, “stripes” (vedi figura 2.13), e la superficie di Fermi.



**Fig. 2.13** Fase stabilizzata di “stripes” del composto  $\text{LaNdSrCuO}_4$  (ref. 2).

Le “stripes” sono una fase con una regolarità di carica e magnetica che è stata osservata in molti superconduttori ad alta temperatura e, nel caso di alcuni cuprati (Nd-LSCO), è stabilizzata con un drogaggio molto basso di neodimio [2]. La superficie di Fermi può essere ricavata integrando gli spettri di fotoemissione su un intervallo di energia vicino al livello Fermi per ottenere mappe della funzione di distribuzione del momento dell'elettrone. In questo caso la forma della superficie di Fermi implica che gli elettroni tendono a disporsi in una sola dimensione, cioè i dati sono incompatibili con la superficie arrotondata di Fermi calcolata per il sistema rame-ossigeno a due dimensioni.

L'alto flusso e la struttura temporale dell'impulso dell' X-FEL sarà anche importante nello studio di soluzioni molto diluite di atomi in solidi o in superfici ed interfacce, come droganti, adsorbati sotto il monostrato e difetti. Un importante esempio di campioni molto diluiti è costituito da adsorbati di molecole organiche autoassemblate sulle superfici con spessori al di sotto del monostrato. Questo argomento di ricerca è rilevante per le sue applicazioni nel campo dei biosensori, degli inibitori di corrosione, del trattamento dei minerali e, molto recentemente, per la

realizzazione di dispositivi prototipo, in vista dell'era del "plastic electronics" [3-7]. Nonostante il crescente interesse per questi sistemi, sono ancora aperte alcune questioni riguardanti le proprietà dell'interfaccia molecola-substrato, l'evoluzione dei livelli elettronici molecolari (formazione di bande estese, larghezze di banda) in funzione del numero di molecole sulle superfici e della loro disposizione geometrica ed il controllo delle proprietà di trasporto (interazione elettrone-fonone ed effetti dei polaritoni). Molte informazioni riguardanti questi sistemi possono essere ottenute, nell'intervallo di energia fotonica del X-FEL, usando la spettroscopia fotoelettronica, la diffrazione dei fotoelettroni e la tecnica dell'EXAFS per le soglie degli atomi leggeri che costituiscono le molecole organiche.

## **Bibliografia**

1. T. Valla et al. *Science* **285**, 2110 (1999)
2. Z.J. Zhou et al. *Science* **286**, 268 (1999)
3. Jairo Sinova, John Schliemann, Alvaro S. Nunez, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 226802 (2001)
4. Franck-J. Meyer zu Heringdorf, M.C. Reuter and R.M. Tromp, *Nature* **412**, 517 (2001)
5. Schön et al., *Nature* **413**, 713 (2001); Schön et al., *Nature* **414**, 470 (2001)
6. M.A. Reed, C. Zhou, C.J. Muller, T.P. Burgin, J.M. Tour, *Science* **278**, 252 (1997)
7. M. Di Ventra, S.T. Pantelides, N.D. Lang, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3448 (2000)

### *Sistemi altamente correlati*

Le fluttuazioni di densità di carica giocano un ruolo fondamentale nei metalli con modesta estensione degli orbitali atomici e forte interazione tra gli elettroni. La loro evoluzione temporale dipende dalla velocità degli elettroni, ed avviene con tempi dell'ordine del femtosecondo. Un caso interessante si ha quando i portatori di carica hanno una massa efficace più pesante di quella degli elettroni liberi. Infatti la forte rinormalizzazione riduce esponenzialmente la larghezza di banda elettronica e ritarda l'"hopping" coerente. Perciò la dinamica delle fluttuazioni di carica può evolvere in frazioni di picosecondi. Ciò apre la possibilità di osservare nel tempo le correlazioni elettroniche con una sorgente X-FEL. E' bene notare che lo studio di quest'effetto quantistico è possibile solo se alla carica fluttuante è associata la rottura di una fase ordinata. In questo caso la radiazione X diffusa dovrebbe produrre picchi che possono essere distinti dal contributo fononico incoerente. Utilizzando la radiazione del X-FEL ultrarapida la diffrazione del superreticolo dovrebbe presentare una struttura interna formata da "speckles" fluttuanti.

Si propone di studiare le fluttuazioni di carica di sistemi ideali come alcune Manganiti che mostrano l'esistenza di rinormalizzazione polaronica e picchi dovuti al superreticolo. Malgrado ciò,

il segnale diffuso da tali superstrutture è debole e sovrapposto ad un fondo consistente [1,2]. Sistemi conduttori quasi monodimensionali (Q-1D) di Peierls producono, invece, evidenti onde di densità di carica (CDW) con una lunghezza di coerenza che dipende dalla temperatura [3]. In questi materiali la CDW è caratterizzata dalle proprietà di “nesting” della superficie di Fermi. A temperatura ambiente la lunghezza di coerenza nanometrica del parametro d’ordine dovrebbe diffrangere una radiazione ultraveloce in “speckles” dinamici. La scala temporale caratteristica del pattern in evoluzione è determinata dalle fluttuazioni delle CDW. Nel caso di accoppiamento debole elettrone-fonone le fluttuazioni dovrebbero essere associate alle vibrazioni termiche del reticolo. Al contrario, sistemi a forte accoppiamento elettrone-fonone dovrebbero evolvere su una scala temporale tipica delle masse polaroniche. Recentemente è stato provato che tali metalli rivelano spettroscopicamente un comportamento a liquido polaronico [4]. Ne consegue che le fluttuazioni nelle CDW dovrebbero essere fortemente correlate al moto coerente degli elettroni ed alla deformazione del reticolo.

1. Vasiliu-Doloc L. et al, PRL 83, 4393 (1999)
2. Shimomura S. et al, PRL 83, 4389 (1999)
3. Sandre E. et al, PRL 86, 5100 (2001)
4. Perfetti L. et al, PRL 87, 216404 (2001)

### Spettromicroscopia

Le tecniche di fotoemissione come la spettroscopia elettronica per analisi chimica sono le sonde elettroniche principali nella scienza dei materiali, ma il loro impatto nella biologia è stato minimo. Un problema critico è che la risoluzione laterale nella fotoemissione convenzionale è limitata a qualche decina di micron, il che la rende quasi inutile per lo studio della maggior parte dei problemi fondamentali in biofisica e biochimica, che si occupano di microstrutture nella gamma del submicron o più piccole. Questo limite è stato superato con la spettromicroscopia con radiazione di sincrotrone da sorgenti di terza generazione nei raggi X molli. Infatti, la spettromicroscopia rappresenta uno strumento unico per la microanalisi chimica quantitativa nella scienza dei materiali e dei film sottili biologici poiché combina la radiazione di sincrotrone con la elevata risoluzione laterale di un microscopio elettronico a fotoemissione [1]. Tutti gli spettromicroscopi elettronici rientrano in uno di questi due gruppi: strumenti foceggianti a scansione [2], i quali ottengono un’alta risoluzione laterale focalizzando il raggio di fotoni sul campione, e strumenti di “imaging” di elettroni [3], i quali utilizzano un dispositivo di foceggiamento elettronico. Tale tecnica di spettromicroscopia è in grado di distinguere quantitativamente il diverso comportamento fisico e

chimico con una determinazione della composizione chimica risolta lateralmente. Infatti le energie di fotoni nella gamma di raggi X molli possono essere utilizzate per studiare tutti gli elementi chimici che hanno livelli di core (soglie K o L) in questo intervallo di energia. La registrazione di una serie di immagini con rivelatori CCD, ognuna ottenuta a un'energia distinta per coprire l'intera soglia di assorbimento, dà luogo a una spettroscopia a due dimensioni dove ogni punto nell'immagine microscopica dà a sua volta origine a uno spettro microscopico. In questo modo la morfologia e la chimica locale di campioni biologici e di campioni di scienza dei materiali sono state indagate con una risoluzione laterale migliore di 100 nm e una risoluzione spettrale di 0.1 eV [3-5]. Come esempi possiamo riferirci a lavori sul diamante, dove è stato possibile distinguere quantitativamente con risoluzione laterale fra fasi di carbonio con varie ibridizzazioni [4], lavori sul dodecahydro-dodecarborate, dove è stato possibile ottenere le immagini chimiche e gli spettri di corrispondenza che identificano il contrasto chimico fra Boro e Silicio, tramite immagini ottenute a diverse energie e sottratte numericamente [5], ed a lavori su cellule neuronali per rilevare posizioni specifiche nelle cellule dove i metalli si raggruppavano dopo essere stati assorbiti [3] (vedi figura 2.14). Queste problematiche ricadono nello studio di sistemi fortemente diluiti e nell'utilizzo dell'alta brillantezza della nuova sorgente X-FEL, la quale offre la possibilità di focalizzare un'alta densità di fotoni in una piccola area. Questo, insieme al miglioramento dei sistemi di focalizzazione elettronici, può ridurre la risoluzione spaziale e spettrale di un fattore 10.

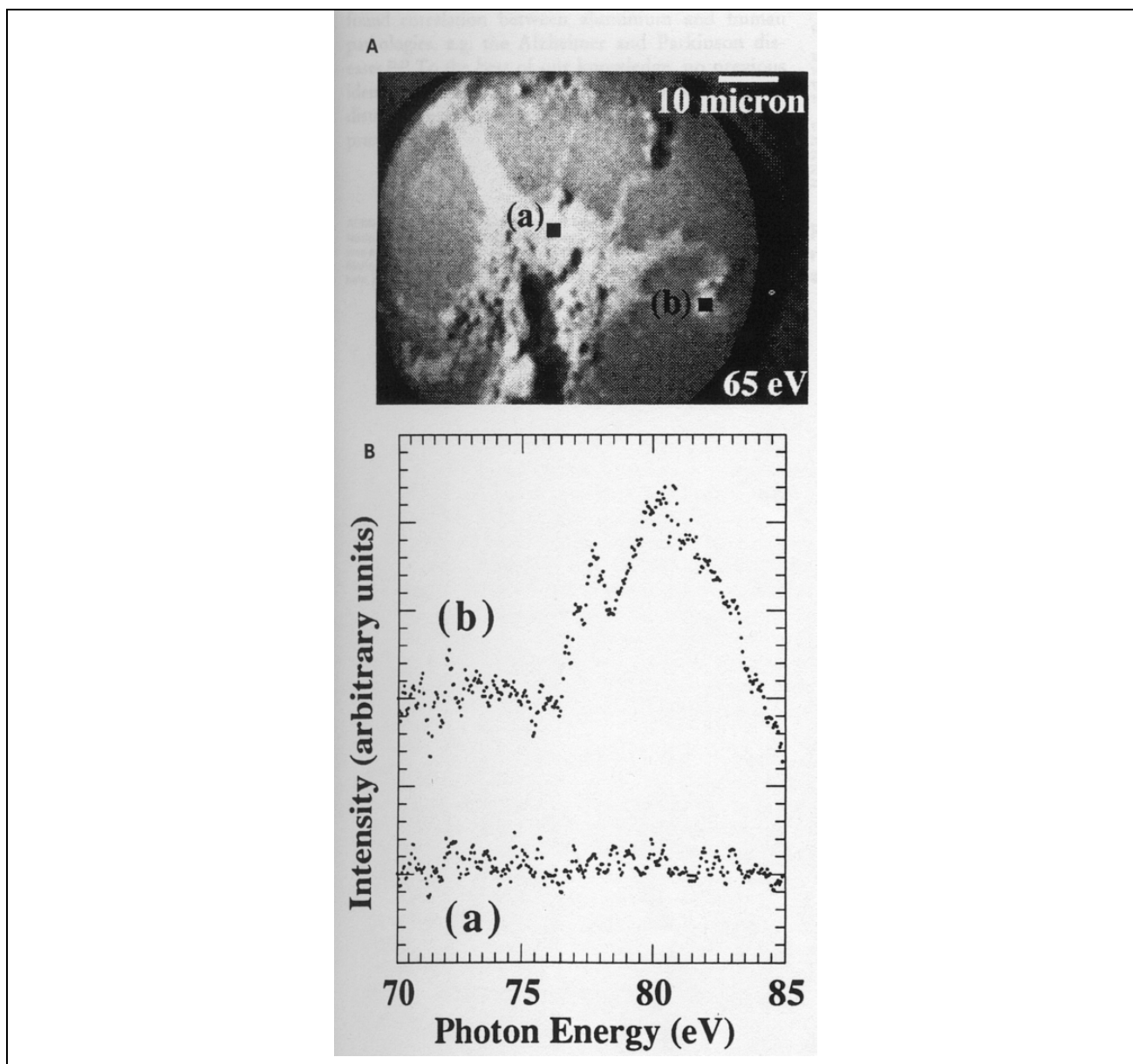


Fig. 2.14 Microimmagine di cellule neuronali drogate con alluminio. Gli spettri di assorbimento dell'alluminio sono riferiti a due regioni diverse della cellula. (rif. G. De Stasio et. al. Neuroreport 4, 1175 (1993)).

## Bibliografia

1. Ch. Ziethen *et al.* J. El. Sp. Rel. Phen. **88-91**, 983 (1998)
2. T. Warwick *et al.* J. El. Sp. Rel. Phen. **84**, 85 (1997)
3. G. De Stasio *et al.* Phys. Rev. E **47**, 2117 (1993)
4. Ch. Ziethen *et al.* J. El. Sp. Rel. Phen. **107**, 261 (2000)
5. G. De Stasio *et al.* Rev. Sci. Instrum. **69**, 2062 (1998)

## Sistemi biologici

Negli ultimi anni grandi sforzi sono stati profusi dalla comunità scientifica internazionale nel “progetto Genoma” ovvero nel sistematico sequenziamento del DNA umano. L’incredibile quantità di dati ottenuta dal completamento di un evento così importante ha già cominciato a produrre informazioni in termini di migliore comprensione dei meccanismi di induzione di alcuni disordini genetici e di alcune patologie. I primi risultati trovano già dirette applicazioni per la salvaguardia della salute e rendono più concreta la prospettiva di produrre farmaci via via più raffinati ed al limite costituiti da proteine direttamente interagenti con il DNA. D’altra parte il sequenziamento del genoma ha anche rivelato l’esistenza di migliaia di geni sconosciuti. Lo studio del modo in cui alcune proteine sono composte e del loro funzionamento è chiaramente critico per comprendere come funzionano le cellule o come insorgono le patologie. Per conseguenza, la caratterizzazione sperimentale di proteine poco note è in continua crescita ed in questo contesto si prevedono importanti benefici dall’introduzione di sorgenti di radiazione come il FEL nei raggi X. Infatti, la radiazione X molle emessa dal X-FEL è estremamente utile in studi biologici, grazie alla possibilità di eccitare risonanze dei livelli di core, e di conoscere quindi in modo quantitativo la distribuzione spaziale di elementi chimici selezionati nelle cellule.

Inoltre, grazie alla struttura temporale della radiazione del X-FEL, tutti i parametri sopra descritti possono essere seguiti nelle loro evoluzioni temporali con esperimenti risolti in tempo su scale che vanno dai femtosecondi ai millisecondi, rendendo così accessibile una gamma di fenomeni attualmente non investigabili neanche nei sincrotroni di più recente concezione.

Quest’ultimo aspetto merita un breve approfondimento; nelle scale temporali dei femto e picosecondi cadono i seguenti fenomeni:

- le vibrazioni atomiche
- i fenomeni di charge transfer che spesso sono i passaggi chiave durante le catalisi enzimatiche o nella reattività delle proteine
- le distorsioni dei legami chimici per effetto, ad esempio, dell’applicazione di campi esterni o durante le reazioni chimiche.

Nelle scale temporali dei nanosecondi e microsecondi avvengono i processi di folding e di unfolding e le transizioni tra diversi stati conformazionali delle proteine e degli acidi nucleici che sono i presupposti fondamentali per il riconoscimento chimico e la funzionalità di queste strutture. Nella scala temporale dei millisecondi cadono, ad esempio, le diffusioni di piccoli metaboliti.

Attualmente, la cinetica delle proteine può essere studiata mediante gli esperimenti di flash-fotolisi [1,2] in cui un intenso impulso laser visibile induce uno stato di non equilibrio nel campione (ad esempio rompe il legame con il ligando in una emoproteina) ed un probe ritardato viene usato



per analizzare il rilassamento del campione (nell'esempio la ricombinazione del ligando). L'utilizzo di una opportuna radiazione dall'X-FEL potrebbe consentire di sondare simultaneamente la struttura ed il comportamento cinetico del campione con specificità chimica.

Altri esempi di applicabilità del X-FEL sono qui di seguito riportati:

- Adesività di biomolecole e cellule a superfici.

Questo è un campo di ricerca in forte sviluppo anche a causa delle potenziali applicazioni nel campo della medicina, che riguardano ad esempio la biocompatibilità di materiali protesici con osteoblasti oppure fibroblasti (con ovvie conseguenze sullo sviluppo di materiali a basso livello di rigetto per impiantazioni), oppure nel campo della biotecnologia, come lo sviluppo di biosensori o biochips.

Anche da un punto di vista più euristico numerose domande sono ancora senza risposta. Ad esempio, come avviene l'adesione di proteine (ad es. fibronectina, vitronectina, trombina ecc.) a metalli, vetri o materiali polimerici? Quali sono i legami chimici cruciali tra le fasi inorganiche e quella organica? L'orientazione molecolare gioca un ruolo? Quali sono le basi del riconoscimento molecolare?

Queste questioni possono trovare risposte usando la spettroscopia dei raggi X che unisce l'elevato flusso e l'alta risoluzione spaziale di una sorgente di radiazione come il FEL.

- Metabolismo cellulare.

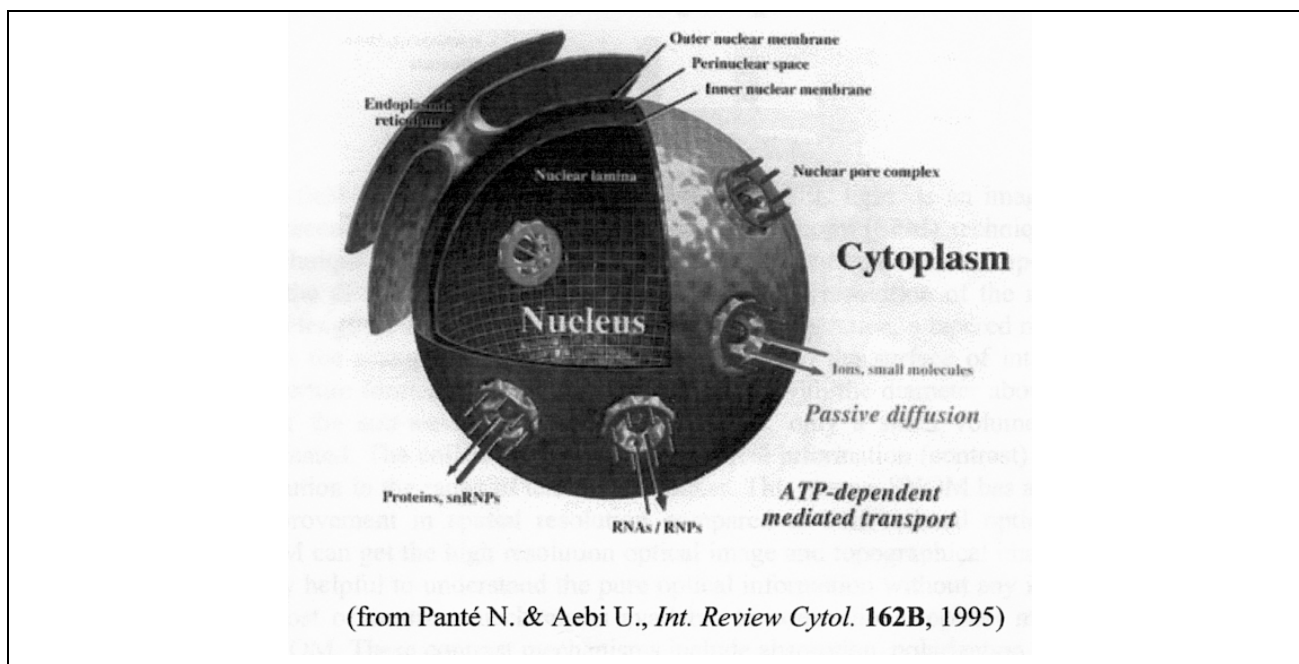
Molti eventi metabolici veloci possono essere innescati o regolati da impulsi laser ottici, anche se la loro evoluzione si può seguire solo attraverso una tecnica di spettroscopia X ultraveloce. Alcuni obiettivi che potrebbero essere raggiungibili sono:

- seguire la polimerizzazione di proteine, lo svolgimento del DNA durante la lettura del codice genetico o dal suo stato impaccato nei cromosomi e l'apertura e chiusura dei canali di membrana;

- studiare sia la dinamica dei canali di membrana plasmatica nativi o perturbati per elettroporazione (analizzabili anche attraverso l'imaging sulla scala del nanosecondo) che la struttura dei pori nucleari che regolano il trasporto di proteine, metaboliti ed ormoni dal e verso il nucleo cellulare (vedi fig. 2.15);

- studiare i pathway metabolici di messaggeri cellulari come gli ioni calcio in termini, ad esempio, del loro rilascio dai reticoli sarcoplasmatici, o del transito attraverso le membrane sia in condizioni fisiologiche che sotto l'effetto di agenti (ad esempio l'applicazione di campi elettromagnetici) che interagiscono con il normale metabolismo del calcio stesso. Studi di questo

tipo saranno possibili con indagini nei raggi X condotte con una sorgente che simultaneamente presenti le caratteristiche temporali, l'alta localizzazione spaziale e la selettività chimica della radiazione X-FEL.



**Fig. 2.15** Schema di una cellula e dei suoi componenti.

- Studi di complessi fotosintetici e di processi fotochimici.

Allo stato attuale gli studi time-resolved dei pigmenti e dei complessi fotosintetici delle piante, per altro condotti spesso “in vivo”, sono essenzialmente svolti con microscopia a fluorescenza. Di conseguenza i dati ottenibili soffrono della limitazione intrinseca della tecnica, ovvero la relativamente scarsa risoluzione spaziale che è, a causa dei noti effetti diffrattivi, tipicamente limitata all'ordine di 1  $\mu\text{m}$  o di poco inferiore. Sotto una tale limitazione, i risultati sperimentali sono necessariamente l'effetto di una media spaziale su un gran numero di centri e processi fotosintetici aventi luogo simultaneamente nella struttura irraggiata. La futura utilizzazione di radiazione X-FEL consentirà di mantenere o migliorare la scala temporale di studio ma di superare le limitazioni legate alla risoluzione spaziale. Inoltre sarà possibile studiare la dinamica e la distribuzione spaziale dei centri fotosintetici direttamente “in vivo” nella loro naturale ubicazione, ossia sulla membrana tilacoide.

Similmente, accoppiando la risoluzione temporale con la selettività chimica derivante dalla possibilità di eccitare livelli di core, sarà possibile studiare i processi fotochimici svolti da cromofori contenenti metalli pesanti. Questo può contribuire, ad esempio, a rivelare l'esistenza e la struttura degli stati intermedi dei processi fotochimici.

### Il problema del danno da radiazione

L'esposizione prolungata ad elevati flussi di raggi X può dar luogo, già nei moderni sincrotroni di terza generazione, a modifiche delle strutture spettroscopiche dei campioni in studio. Un tale effetto, osservato numerose volte negli anni passati, è particolarmente critico nel caso dei relativamente delicati campioni biologici ed è stato identificato come dovuto al danneggiamento del campione o alla modifiche dei componenti del target per effetto termico indotto dagli elettroni o radicali prodotti per radiolisi del buffer [3,4]. È chiaro che effetti di questo tipo sono, a maggior ragione, attesi anche nel caso del X-FEL e, qualunque sia il meccanismo attraverso il quale vengono prodotte le modifiche del campione, le strategie di salvaguardia vanno considerate come aspetti chiave nella progettazione di esperimenti biologici che prevedano l'utilizzo della radiazione X-FEL. Infatti si può sostenere che una volta risolto il problema dei danni da radiazione, una nuova categoria di esperimenti biologici di alta qualità sarà possibile, molti dei quali non sono attualmente neppure prevedibili.

Tuttavia, è bene notare che la produzione "in situ" di specie ossidanti, che in genere costituisce un problema, può anche risultare in un comodo e potente strumento per indurre e studiare i meccanismi e la dinamica del danneggiamento indotto dai raggi X nelle cellule. Inoltre è noto che la produzione di radicali aggressivi ha luogo anche "in vivo" ed è coinvolta in processi come l'invecchiamento naturale (per esempio nei globuli rossi) [5] e nello sviluppo di un gran numero di patologie (inclusi apoptosi e cancro). La produzione artificiale di radicali aggressivi aiuterà a comprendere il radical-trapping di composti (ad esempio glutatione o farmaci di-idro piridinici) [6,7] candidati per applicazioni farmacologiche.

Tra le strategie utilizzate per ridurre il danneggiamento e per conservare la stabilità strutturale dei campioni biologici (proteine, acidi nucleici, organelli, membrane, cellule intere e tessuti), durante l'esposizione alle alte dosi di raggi X, ricordiamo il congelamento veloce del campione e l'analisi conseguente a bassa temperatura. Attualmente, campioni idratati spessi 10 micron possono essere analizzati all'interno delle lunghezze d'onda della "finestra dell'acqua". Per esempio, l'acquisizione di immagini microscopiche a risoluzione di un nanometro richiede una dose di circa  $10^7$ - $10^8$  Gray mentre la tolleranza dei campioni biologici può raggiungere i  $10^{10}$  Gray se il campione è sottoposto a shock-freezing [8]. Un'altra strategia assai semplice consiste nell'analizzare aree diverse del campione, ad esempio eseguendo una scansione del campione rispetto al fascio del X-FEL. Infine, quando si studiano sistemi in soluzione (proteine o acidi nucleici), si può fare in modo di mantenerli in lento flusso usando, ad esempio, pompe peristaltiche.

Al di là delle tecniche sopra citate, va segnalato che, recentemente, è stata eseguita una analisi della dinamica del deterioramento [9] che ha riguardato simulazioni della stima del danno da

radiazione in funzione dell'energia dei fotoni, della lunghezza dell'impulso laser e della dose assorbita dal campione. Il lavoro ha mostrato che la soglia tipica di danno di circa 200 fotoni X (a 12 keV) per Å<sup>2</sup> può essere estesa a dosi molto alte ed impulsi estremamente brevi come quelli dell' X-FEL [9]. Per conseguenza si può predire che singole molecole idratate, microcristalli o particelle sub-cellulari intere quali nuclei, cloroplasti o ribosomi, opportunamente manipolati ed in particolare una volta incapsulati in micro gocce, si possono analizzare, all' interno di finestre temporali pari al singolo micro impulso dell' X-FEL prima che i danni del campione possano avere luogo.

## **Bibliografia**

1. Y. Imamoto, K. Mihara, F. Tokunaga and M. Kataoka, *Biochemistry* **40**, 14336 (2001)
2. E.K. Wilson, A. Bellelli, F. Cutruzzola, W.G. Zumft, A. Gutierrez and N.S. Scrutton, *Biochem J.* **356**, 39 (2001)
3. Prusakof V. E., Stukan R. A., Davidov R. M. and Gersonde K., *FEBS* **2673**, 158 (1985).
4. Le Tilly V., Pin S., Hickel B. and Alpert B., *J. Am. Chem. Soc.* **119**, 10810 (1997)
5. Caprari P., Scuteri A., Salvati A.M., Bauco C., Cantafora A., Masella R., Modesti D., Tarzia A. and Marigliano V., *Exp Gerontol.* **34**, 47 (1999)
6. Girasole M., Congiu-Castellano A., Arcovito A., Amiconi G. and Cricenti A., In “*Epioptics 2000*”, *proceedings of 19<sup>th</sup> course of the international school of solid state physics (Ed. A. Cricenti). World Scientific Publisher – Singapore. Pg. 52-63*
7. R. Rossi, D. Barra, A. Bellelli, G. Boumis, S. Canofeni, P. Di Simplicio, L. Pascarella and G. Amiconi, *J. Biol. Chem.* **273**, 19198 (1998)
8. Schneider, G., *Ultramicroscopy* **75**, 85 (1998)
9. R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert, and J. Hajdu, *Nature* **406**, 752 (2000)

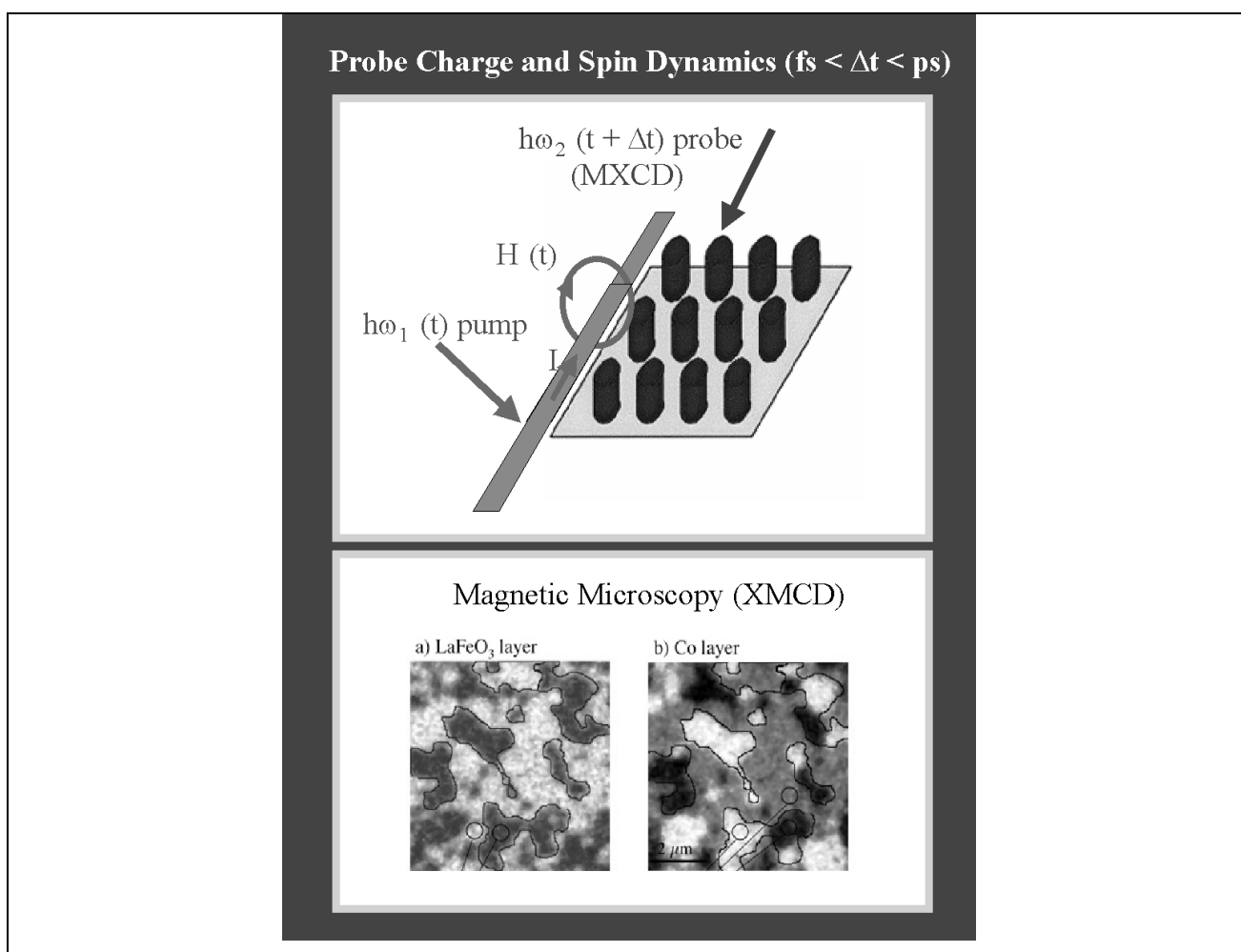
## Materiali magnetici

Le caratteristiche della radiazione FEL offrono nuove potenzialità nello studio delle proprietà magnetiche della materia. Aspetti di fondamentale interesse, che costituiscono attuale oggetto di ricerca nel magnetismo, spaziano dalla descrizione quanto-meccanica di sistemi elettronici altamente correlati, alla relazione tra il comportamento magnetico, la morfologia e la struttura di nanosistemi, alla verifica dei concetti universali nelle transizioni di fase. Inoltre, lo studio dei fenomeni magnetici fornisce una guida nella sintesi di nuovi materiali per lo sviluppo di tecnologie innovative. Le proprietà di rilevanza funzionale possono essere ingegnerizzate attraverso il controllo della geometria atomica, della composizione chimica, e della dimensionalità dei materiali magnetici. L'impatto dei recenti progressi della scienza dei materiali sulle applicazioni industriali è illustrato in modo esemplare dall'introduzione di nanostrutture artificiali nella tecnologia dei dispositivi magnetici [1-3], come elementi funzionali per sensori e memorie magnetiche di nuova concezione.

La ricerca sul magnetismo e sui materiali magnetici ha beneficiato negli ultimi anni dello sviluppo di nuove metodologie basate sulla radiazione prodotta dai sincrotroni di terza generazione. Varie tecniche di spettroscopia, magnetometria, diffrazione, diffusione e microscopia, disegnate specificamente per sfruttare effetti di dicroismo magnetico indotti da radiazione circolarmente e linearmente polarizzata, hanno già trovato ampia applicazione [4-7]. L'alta brillantezza e la struttura temporale degli impulsi FEL ( $1 \text{ nm} < \lambda < 10 \text{ nm}$ ) permetterà, attraverso l'ulteriore sviluppo di queste metodologie, di accedere allo studio delle proprietà magnetiche su scale microscopiche e in regimi dinamici non ancora esplorati. Nel seguito verranno brevemente esposte alcune linee guida di possibili applicazioni della radiazione FEL allo studio di fenomeni magnetici, che vanno dai processi ultra-veloci in risposta a impulsi di luce o di campo magnetico, alle interazioni magnetiche in sistemi altamente diluiti, alle proprietà di trasporto elettronico spin-dipendente e alla visualizzazione della dinamica di spin nelle nanostrutture.

- La commutazione veloce della magnetizzazione di singoli elementi miniaturizzati è un processo intimamente connesso con il limite di operazione di dispositivi magnetici e magneto-ottici. La dinamica degli stati di non-equilibrio che segue un breve impulso di campo magnetico o un impulso laser determina infatti l'intervallo di tempo minimo necessario per scrivere e leggere informazioni su un supporto di memoria magnetica. Questi tempi caratteristici sono strettamente connessi ai transienti di termalizzazione delle eccitazioni elettroniche, di spin e del reticolo. Sebbene questi processi siano inoltre di evidente importanza fondamentale, la difficoltà di seguire la dinamica della magnetizzazione e dei processi di rilassamento elettronico su scale di tempo ultra-brevi ne ha ostacolato il loro studio. Studi basati sull'effetto Kerr magneto-ottico e sulla

polarizzazione di spin di elettroni fotoemessi [8-9] indicano che la dinamica dei processi di termalizzazione di un gas caldo di elettroni, eccitato da un laser nel visibile, ha influenza sullo stato magnetico di film sottili su una scala temporale ( $10 \text{ fs} < \tau < 10 \text{ ps}$ ) apparentemente più breve del tempo di rilassamento elettrone- fonone. Inoltre è stata dimostrata la possibilità di ottenere un'inversione ultra-veloce (1-10 ps) della magnetizzazione con impulsi magnetici ultra-brevi (vedi fig. 2.16) generati da un fascio di elettroni ad alta energia [10]. Tutti i metodi attualmente esistenti non sono tuttavia in grado di sondare direttamente l'evoluzione della magnetizzazione e dei momenti magnetici, né di esaminare in dettaglio i meccanismi di rilassamento elettronico su intervalli di tempo ultra-brevi.



**Fig. 2.16** In alto è riportato un esperimento di pump-probe in cui l'eccitazione è fornita da un breve impulso di radiazione trasformato in impulso magnetico. La perturbazione sul materiale magnetico è rivelata mediante tecnica di "imaging" con radiazione polarizzata.

Le tecniche di diffusione di raggi X costituiscono uno strumento efficace per l'analisi delle proprietà elettroniche e magnetiche della materia. Selezionando l'energia del fotone e il momento scambiato, si ottiene sensibilità chimica, tramite l'eccitazione dei livelli di core, e alla simmetria del sito, tramite l'analisi del gruppo spaziale. Il dicroismo circolare magnetico con impulsi di raggi X

mogli generati dal FEL renderà possibile seguire la risposta temporale di un sistema di spin a una perturbazione ultra-veloce, che non è altrimenti accessibile con altre metodologie. Tecniche di correlazione temporale possono sfruttare il dicroismo magnetico in assorbimento e riflettività usando un meccanismo di *pump and probe* con luce circolarmente polarizzata. L'evoluzione degli stati magnetici di non equilibrio indotti da un laser o da un impulso di campo magnetico, o da onde di alta pressione, può essere sondata da un impulso ritardato di radiazione X polarizzata. Il dicroismo con raggi X molli fornisce misure quantitative vettoriali, intensità e orientazione, del momento magnetico [4,5] sia di spin che orbitale. Inoltre attraverso la selettività dell'eccitazione di core, questo metodo permette di sondare la dinamica di spin per ogni elemento chimico presente nel sistema in studio. Il più breve intervallo dinamico che può essere studiato è definito essenzialmente dalla struttura temporale (circa 150 fs) dell'impulso di radiazione, mentre l'uso della tecnica seeding permetterà di sondare intervalli più brevi di 50 fs. Gli intervalli di energia più rilevanti per questi studi corrispondono alla regione delle soglie  $2p \rightarrow 3d$  (400-1000 eV) negli elementi 3d e le eccitazioni  $4d \rightarrow 4f$  (100-200 eV) nelle terre rare.

- Un ulteriore approccio allo studio della dinamica ultra-veloce di magnetizzazione è rappresentato dalla visualizzazione diretta, con risoluzione temporale, di nanostrutture magnetiche. Vari schemi possono essere utilizzati a questo scopo, adoperando tecniche *pump and probe* in combinazione con la microscopia di fotoelettroni o di fluorescenza di raggi X [11]. Un possibile esperimento consisterà nella generazione di un breve impulso di campo magnetico con un laser nel visibile, seguito da un impulso FEL sincronizzato che agirà come sonda della risposta magnetica. La rivelazione di fotoelettroni o di fluorescenza di raggi X indotti dall'impulso FEL può essere usata per visualizzare la distribuzione spaziale della magnetizzazione e la sua evoluzione temporale ultra-veloce (fs) seguente all'impulso magnetico. Mentre la risoluzione spaziale raggiungibile attualmente con la microscopia a fotoelettroni è limitata a circa 10 nm, in modo operativo statico, la brillantezza del FEL permetterà di registrare immagini con risoluzione nanometrica durante un singolo impulso di luce. I sistemi di interesse per questi studi includono materiali strutturalmente complessi, come le nanostrutture composite per applicazioni nella spintronica, nelle quali la dinamica delle componenti sia antiferromagnetiche che ferromagnetiche può essere seguita usando il dicroismo lineare e circolare. Gli effetti di dicroismo magnetico nell'assorbimento e nell'emissione di raggi X, permetteranno di separare il contributo magnetico dei diversi elementi chimici distribuiti nei nanocomponenti funzionali. La microscopia magnetica con risoluzione su scala nanometrica può trovare applicazione inoltre nello studio della statica e dinamica della struttura magnetica delle pareti di dominio di film sottili e superfici, e delle fluttuazioni magnetiche nell'intorno di una transizione di fase.

- Altre tecniche di diffusione potranno trarre vantaggio dall'aumento della coerenza e della brillantezza della radiazione FEL. La coerenza trasversale e longitudinale della luce definisce una precisa relazione di fase tra la radiazione diffusa da diversi domini. Questa relazione di fase è espressa nella figura di diffusione in termini di speckles che sono legate alla distribuzione dei domini. Fino ad oggi gli esperimenti con luce coerente sono stati principalmente dominio dei laser nel visibile e vicino ultravioletto. La coerenza della radiazione prodotta dagli ondulatori ha permesso di iniziare lo studio degli effetti coerenti nella diffusione di raggi X [12]. La lunghezza caratteristica di indagine negli esperimenti di diffusione è legata alla lunghezza d'onda. Alle lunghezze d'onda dei raggi X molli la diffusione coerente accede ai vettori d'onda caratteristici di proprietà di alto interesse scoperte in nuove classi di materiali. La lunghezza d'onda dei raggi X molli è ad esempio comparabile con la dimensione dei materiali nanostrutturati. La diffusione di raggi X molli coerenti può dare informazioni dettagliate sulla dinamica dei domini magnetici, sondare il ruolo delle interfacce nei multistrati magnetici e nanostrutture, e mettere in evidenza l'ordine di carica e orbitale[13]. Inoltre i raggi X molli sono adatti per analisi di superficie. L'intervallo di energia dei raggi X molli comprende le soglie  $2p \rightarrow 3d$  dei metalli di transizione, che permettono di sondare come stati finali le bande responsabili delle proprietà magnetiche. Nel caso dei raggi X duri sono invece accessibili le transizioni  $1s \rightarrow 3p$ , solo indirettamente legate al magnetismo. La diffusione magnetica risonante rappresenta un altro metodo di studiare la dinamica di spin sulla superficie e nelle nanostrutture. La misura delle superstrutture magnetiche con la diffusione di raggi X molli può sondare l'ordinamento magnetico di strutture con vettore d'onda nanometrico [14]. Misure di diffusione risolte in tempo possono dare inoltre la possibilità di studiare la dinamica di spin sia di sistemi ordinati costituiti da insiemi di punti e fili quantistici, sia che di domini magnetici superficiali.

- L'alta brillantezza degli impulsi FEL può essere utilizzata per metodologie che sono severamente limitate dalla brillantezza della sorgente negli attuali sincrotroni. Gli impulsi FEL circolarmente polarizzati possono dare accesso alla dinamica e correlazione di sistemi di impurezze altamente diluiti. Gli attuali limiti di rivelazione nell'assorbimento di raggi X molli in raccolta di elettroni sono dell'ordine di  $10^{12}$  atomi/cm<sup>2</sup> [15], e molto più bassi (circa tre ordini grandezza) nel caso della spettroscopia di emissione X. Tra i casi di grande interesse, che sono difficilmente accessibili con gli odierni metodi a disposizione, sono il comportamento Kondo o fermione pesante di impurezze magnetiche, i processi di rilassamento lento in vetri di spin e metalli magnetici amorfi, i clusters e i magneti molecolari, isolati o depositati su superfici. La rivelazione della fluorescenza X è il metodo più promettente per molte applicazioni su sistemi diluiti, in quanto il segnale magnetico può essere separato dal fondo proveniente dalla matrice non magnetica con un efficiente filtro energetico.



La conoscenza della struttura elettronica in prossimità del livello di Fermi è di grande importanza per la comprensione e l'ingegnerizzazione delle proprietà di trasporto dipendenti dallo spin. I nuovi dispositivi nel campo della spintronica si basano sul controllo della polarizzazione di spin dei portatori di carica per registrare e trasferire informazione [16-17]. I dispositivi spintronici consistono tipicamente in strutture a strati sottili, integranti componenti magnetiche e semiconduttrici, ordinate in pattern di scala sub-micrometrica. Le applicazioni potenziali della spintronica comprendono memorie nanostrutturate ad accesso casuale e non volatili, e transistor di spin, che utilizzano gli effetti tunnel e di diffusione in strati magnetici sottili dipendenti dallo spin elettronico. La spettroscopia di fotoemissione con l'analisi della polarizzazione di spin è il metodo più diretto per lo studio della struttura elettronica di materiali magnetici, in quanto è in grado di determinare tutti i numeri quantici  $(E, k, \sigma)$  che definiscono uno stato elettronico. Esperimenti completi di fotoemissione (cioè risolti in  $E, k, \sigma$ ) sono severamente limitati dal flusso nelle sorgenti di radiazione di sincrotrone di terza generazione alla risoluzione di circa 50 meV in energia e  $0.05 \text{ \AA}^{-1}$  in momento, a causa della scarsa efficienza (circa  $10^{-4}$ ) degli analizzatori di spin. L'incremento della brillantezza media con una sorgente FEL renderà possibili esperimenti di fotoemissione risolta in spin con una risoluzione in energia di 1 meV e in momento di circa  $0.01 \text{ \AA}^{-1}$ . La rilevanza di questo progresso è manifesta considerando il ruolo delle eccitazioni a bassa energia dipendenti dallo spin da stati vicini alla superficie di Fermi per le proprietà di trasporto degli elettroni polarizzati, per il riorientamento magnetico dovuto all'anisotropia cristallina, e per i meccanismi di accoppiamento tra nanostrutture magnetiche. Informazioni dirette sull'evoluzione temporale dei processi di rilassamento elettronico possono essere ottenuti da esperimenti pump and probe, nei quali la popolazione degli stati eccitati indotta da un impulso laser nel visibile venga seguita con risoluzione temporale attraverso una misura di fotoemissione con analisi di spin. In congiunzione con esperimenti di dicroismo magnetico, questi studi sono in grado di dare informazioni dirette sulla dinamica delle eccitazioni elettroniche e di spin in fenomeni magnetici ultra-veloci.

## Bibliografia

1. P. Gruenberg, *Physics Today*, (2001)
2. Gary A. Prinz, *Science* **282**, 1660 (1998)
3. F. J. Himpsel, F. J., Ortega, J.E., Mankey, G.J. & Willis, R.F., *Advan. Phys.* **47**, 511-597 (1998)
4. B.T. Thole, P. Carra, F. Sette, G. van der Laan, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1943-1946 (1992)
5. P. Carra, B.T. Thole, M. Altarelli, X. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 694 (1993)
6. F. Nolting *et al.*, *Nature* **405**, 767 (2000)

7. H. A. Dürr, G. Y. Guo, G. van der Laan, J. Lee, G. Lauhoff, J. A.C. Bland, *Science* **277**, 213 (1997)
8. E. Beaupaire, J.C. Merle, A. Daunois, and J. Y. Bigot, *Phys.Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996)
9. A.Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, W. Eberhardt, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5146 (1997)
10. C. H Back, D. Weller, J. Heidmann, D. Mauri, D. Guarisco, E.L. Garwin, H. C. Siegmann, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3251 (1998)
11. A. Scholl, J. Stöhr, J. Luning, W. Seo, J. Fompernyne, H. Siegwart, J.P. Locquet, F. Nolting, S. Anders, E.E. Fullerton, M.R. Scheinfein, H.A. Padmore, *Science* **287**, 1015 (2000)
12. S. Eisebit, A. Karl, R. Scherer, W. Eberhardt, M. Adamcyk, T. Tiedje, C. Pistonesi, *Synchrotron Radiation News*, **11**, N.5, (1998)
13. C. W. M. Castleton, M. Altarelli, *Phys. Rev. B* **62**, 1033 (2000)
14. H. A. Dürr, E. Dudzik, S.S. Dhesi, J.B. Goedkoop. G. van der Laan, M. Belakhovsky, C. Mocuta, A. Marty, Y. Samson, *Science* **284**, 2166 (1999)
15. P. Gambardella, S. S. Dhesi, S. Gardonio, C. Grazioli, P. Ohresser, C. Carbone, *Phy. Rev. Lett.* **88**, 047202 (2002)
16. B. Binasch, P.Grünberg, F. Sauerbach, and W. Zinn, *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1988)  
Baibich, J.M. Broto, A.Fert, F. Nguyen van Dau, F. Petroff, P.Etienne, G. Creuzet, A. Friedrich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2471 (1988)
17. H. Ohno, *Science*, **281**, 951 (1998), Y. Ohno, D. K. Young, B. Beschoten, F; Matsukura, H. Ohno & D. D. Awschalom, *Nature* **402**, 79 (1999)
18. K. Maiti, C. Malagoli, E. Magnano, A. Dallmeyer, C. Carbone, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2846 (2001)

### 2.3.5 Nanoimaging

#### Generalità

Le tecniche e le applicazioni di microscopia a raggi X hanno subito negli ultimi anni una vera e propria rivoluzione a causa delle caratteristiche innovative (in particolare brillantezza e coerenza spaziale) delle sorgenti di radiazione di sincrotrone di terza generazione, sia nella regione delle basse che in quella delle medie e alte energie. Tra i risultati di maggior rilievo occorre citare il raggiungimento di risoluzioni spaziali nanometriche ( $\approx 30$  nm per basse energie e 100 nm per le alte [1-2]) e lo sviluppo di tecniche di misura innovative basate sul contrasto di fase. La realizzazione di una sorgente laser ad elettroni liberi che sfrutti l'auto-amplificazione coerente porterà presumibilmente ad un analogo salto di qualità consentendo l'apertura di nuovi filoni di indagine per una conoscenza della materia, sia biologica che inerte, sempre più approfondita. Infatti, se da un

lato la brillantezza e la coerenza spaziale pressoché totale della sorgente SPARX consentiranno di migliorare le prestazioni delle ottiche e le tecniche di misura già attualmente in uso, le sue caratteristiche temporali, basate sulla successione di impulsi ultra-corti, apriranno un campo di indagine totalmente nuovo anche nell'ambito dell'acquisizione di micro-immagini con raggi X.

### *Ottiche*

Nella microscopia a raggi X di bassa energia (al di sotto di 1 KeV) le ottiche più utilizzate e studiate sono le lenti di Fresnel (o "zone plates"). Esse sono costituite da anelli concentrici che alternano materiali più o meno opachi ai raggi X. Attraverso un fenomeno di diffrazione, il fascio in ingresso viene focalizzato in una regione di dimensioni estremamente ridotte (poche decine di nm). Le lenti di Fresnel sono correntemente usate sia per realizzare microscopi "full field", sia microscopi a scansione. La tendenza attuale è da un lato quella di migliorare la risoluzione spaziale e l'efficienza, dall'altro di sviluppare nuovi concetti per migliorare il contrasto ottenibile, specie in materiali leggeri come quelli biologici. Riguardo il miglioramento della risoluzione spaziale, che attualmente nella regione dei raggi x molli è dell'ordine di 30 nm ed è essenzialmente limitata dalla capacità di microfabbricazione, grande interesse ha suscitato lo sviluppo di zone plates modificate da fori opportunamente distribuiti tra gli anelli [3]. Le ottiche così ottenute dovrebbero raggiungere una risoluzione spaziale inferiore a 10 nm, ma con relativamente bassa efficienza. Le sorgenti X-FEL ad altissima brillantezza potranno fornire flussi sufficienti, anche con un singolo impulso, ad ottenere informazioni con risoluzioni spaziali finora riservate a tecniche di microscopia elettronica.

### *Contrasto di fase*

L'altro fronte di indagine riguarda le ottiche e le tecniche che consentono di registrare le variazioni della parte reale dell'indice di rifrazione piuttosto che le variazioni della parte immaginaria. Infatti nel primo caso si agisce sulla fase dell'onda, mentre nel secondo sulla sua ampiezza. Essendo la fase molto più sensibile anche a piccole variazioni dell'indice di rifrazione, è possibile ottenere un contrasto molto più elevato. Sono state quindi sviluppate ottiche e metodologie atte a registrare microradiografie a contrasto di fase. Ad esempio recentemente sono state fabbricate Fresnel zone plates a contrasto interferenziale con risoluzione dell'ordine di 0.16  $\mu$  che mostrano un contrasto, in microstrutture di PMMA, estremamente accentuato rispetto a quello dovuto al semplice assorbimento [4]. È importante notare che l'aumento del contrasto consente anche di diminuire la dose assorbita, e quindi il danneggiamento in materiali biologici sensibili alla radiazione. Anche altre modalità e ottiche sono state sviluppate sia nella regione delle basse che della alte energie per realizzare radiografie a contrasto di fase [5-6]. Poiché la coerenza spaziale del

fascio è un requisito essenziale di queste tecniche, esse sono state sviluppate principalmente presso le sorgenti di radiazione di sincrotrone. La sorgente SPARX con le sue caratteristiche di coerenza e brillantezza, consentirà un uso estensivo di questo tipo di tecniche, migliorandone la risoluzione spaziale e l'efficienza, ed aggiungendo ad esse la dimensione temporale. Infatti la successione di impulsi ultra-brevi consentirà di seguire l'evoluzione di fenomeni anche complessi sia in campo biologico che nel campo della scienza dei materiali sulla scala dei picosecondi, un traguardo impensabile con le sorgenti attuali.

### *Spettromicroscopia*

Nella spettromicroscopia si sfrutta la brusca variazione del coefficiente di assorbimento nelle vicinanze della soglia di assorbimento. Con la successione ravvicinata di due immagini ad energie leggermente superiori e leggermente inferiori, rispettivamente, della soglia di assorbimento (“dual band imaging”) e la loro mutua sottrazione è quindi possibile mettere in evidenza solo la presenza di determinati elementi [7]. Accoppiata ad un'alta risoluzione spaziale questa tecnica permette una mappatura molto accurata degli elementi presenti. Ancora più interessante è la possibilità di misurare lo stato di valenza di un determinato elemento, in quanto la posizione della soglia è da essa determinata. La sorgente SPARX consentirà di effettuare questo tipo di analisi dinamicamente, e quindi di poter seguire l'evoluzione, ad es. di una reazione chimica, o di un fenomeno chimico-biologico sia spazialmente che temporalmente.

### **Bibliografia**

1. J. Thieme et al., eds. “*X-ray microscopy and spectromicroscopy*” (Springer, Berlin, 1998)
2. S.Di Fonzo et al., *Nature*, **403**, 638 (2000)
3. L.Kipp et al., *Nature*, **414**, p. 184 (2001)
4. T. Wilhein et al., *Appl. Phys. Lett.*, **78**, 2082 (2001)
5. S. Lagomarsino et al., *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 2557 (1997)
6. F. Arfelli et al., *Phys. Med. Biol.*, **43**, 2845 (1998)
7. Ade et al., *Science*, **258**, 972 (1992)
8. G.R. Harp, **42**, 9199 (1990)

### *Microradiologia*

## Introduzione

Le sorgenti avanzate di raggi x sono all'origine di una vera rivoluzione nel campo della radiologia, tanto per applicazioni in scienza dei materiali che per studi biologici e, con ogni probabilità, per usi diagnostici [1-3]. La rivoluzione è iniziata con l'avvento di sorgenti di tipo luce di sincrotrone, e sarà senz'altro accelerata dall'arrivo delle nuove sorgenti pulsate di tipo SASE-FEL (*"Free Electron Lasers"* basati sul meccanismo *"Self Amplified Spontaneous Emission"*).

Il carattere rivoluzionario delle nuove tecniche radiologiche può essere compreso sulla base di considerazioni abbastanza semplici [2,3]. Fin dalla scoperta di Röntgen, la radiologia è stata di gran lunga la principale area di applicazione dei raggi x. La formazione di immagini si è sempre basata sul differente assorbimento dei raggi x nelle varie parti dell'oggetto. Occorre sottolineare che tale assorbimento è molto ridotto: questa proprietà è nel contempo la chiave per il successo delle tecniche radiologiche ma anche la loro principale limitazione.

Da un lato, infatti, il basso assorbimento consente alla radiologia di "osservare" le parti interne degli oggetti, compresi i pazienti in tecniche diagnostiche. D'altro canto, però, questo comporta delle differenze limitate nell'assorbimento di parti diverse degli oggetti, e quindi a dei problemi di contrasto.

Il problema è spesso risolto aumentando il livello di esposizione e con esso il segnale. Questo crea però dei seri problemi: la dose di raggi x può danneggiare il campione e, nel caso di diagnosi radiologiche, è semplicemente inaccettabile. Le conseguenze sono importanti anche sul piano sociale. Per esempio, la diagnosi precoce del cancro al seno può oggi portare a delle terapie molto efficaci – ma purtroppo la diagnosi radiologica sistematica è ancora limitata dai problemi di contrasto.

Come si può aumentare il contrasto senza aumentare la dose? Occorre considerare il meccanismo d'interazione fra raggi x e oggetto nella sua globalità [2,3]. A parte l'assorbimento occorre specificamente considerare i meccanismi d'interazione legati all'indice di rifrazione del materiale (o, più esattamente, alla parte reale dell'indice di rifrazione complesso).

Si può immaginare, per esempio [3], un fascio collimato di raggi x che raggiunge il bordo fra due zone dell'oggetto con diversi indici di rifrazione. Se il bordo non è di larghezza nulla, la rifrazione porta a una deviazione locale del fascio che produce nelle immagini delle caratteristiche doppie frange – ed un fortissimo aumento della "visibilità" del confine fra le due zone. In modo analogo, la visibilità dei bordi può essere aumentata dal meccanismo – anch'esso legato all'indice di rifrazione – della diffrazione di bordo di Fresnel [1,2].

In linea di principio, questi tipi d'interazione fra raggi x e oggetto possono essere più efficaci nel produrre contrasto del meccanismo tradizionale legato all'assorbimento. Infatti, le differenze

rispetto al vuoto degli indici di rifrazione dei materiali, pur limitate, sono però comparativamente più grandi che le differenze nell'assorbimento. Tale vantaggio si accentua con l'accorciarsi della lunghezza d'onda.

Potrebbe allora sorgere la questione: per quale motivo, a oltre un secolo dalla scoperta dei raggi x, la radiologia è pur sempre principalmente basata sull'assorbimento? La risposta è che le tecniche legate all'indice di rifrazione richiedono caratteristiche molto avanzate della sorgente di raggi x [1-3]. Specificamente, l'esempio sopra menzionato funziona solo se la sorgente emette un fascio di raggi x molto collimato, cioè con bassa divergenza angolare. Più in generale, i meccanismi legati all'indice di rifrazione possono essere utilizzati solo con sorgenti di alta coerenza spaziale (le esigenze sono più moderate per quanto concerne la coerenza temporale) [2,3].

Le sorgenti convenzionali di raggi x offrono una coerenza spaziale estremamente limitata: esse sono di grandi dimensioni e producono fasci divergenti. Questi problemi possono essere corretti usando degli schermi muniti di piccoli fori. La soluzione è però poco efficace, in quanto utilizza solo una piccolissima frazione dei raggi x emessi dalla sorgente (vedi paragrafo 2.2.4).

### *Programmi attuali*

La vera soluzione è fornita da sorgenti non convenzionali quali i sincrotroni e, potenzialmente, i FEL. Recentemente, alcuni gruppi [1-3] negli Stati Uniti, in Svizzera, in Francia, in Germania, nel Giappone e in altri paesi hanno iniziato programmi sperimentali di radiologia non-convenzionale – denominata genericamente (anche se in modo non completamente corretto) “radiologia a contrasto di fase”. L'Italia è già all'avanguardia in questo campo [1-3].

I risultati di questi primi programmi sono già molto spettacolari e hanno già passato la fase di solo sviluppo delle tecniche. A titolo d'esempio, la Fig. 2.17 mostra alcune immagini ottenute in campioni biologici [4]. Si può notare il contrasto elevato, ottenuto con dosi molto ridotte di raggi x, tipicamente 5-10 volte più piccole che nella radiologia convenzionale. Le immagini della Fig. 1 rivelano anche l'eccezionale livello di risoluzione laterale delle nuove radiologie.

Contemporaneamente alla risoluzione laterale, la radiologia a contrasto di fase ha già raggiunto un alto livello di risoluzione temporale che consente delle analisi in tempo reale di fenomeni biologici e nella scienza dei materiali. Come mostrato dalla Fig. 2.18, tali tecniche in tempo reale possono già essere usate nello studio di organismi viventi (nel caso in questione, un campione micro-ittico della dimensione di circa 500  $\mu\text{m}$ )[4].

I risultati sono analogamente spettacolari nel campo della scienza dei materiali. Si possono citare a tale proposito gli studi di elettrodeposizione in tempo reale e quelli dei meccanismi di frattura nelle leghe.

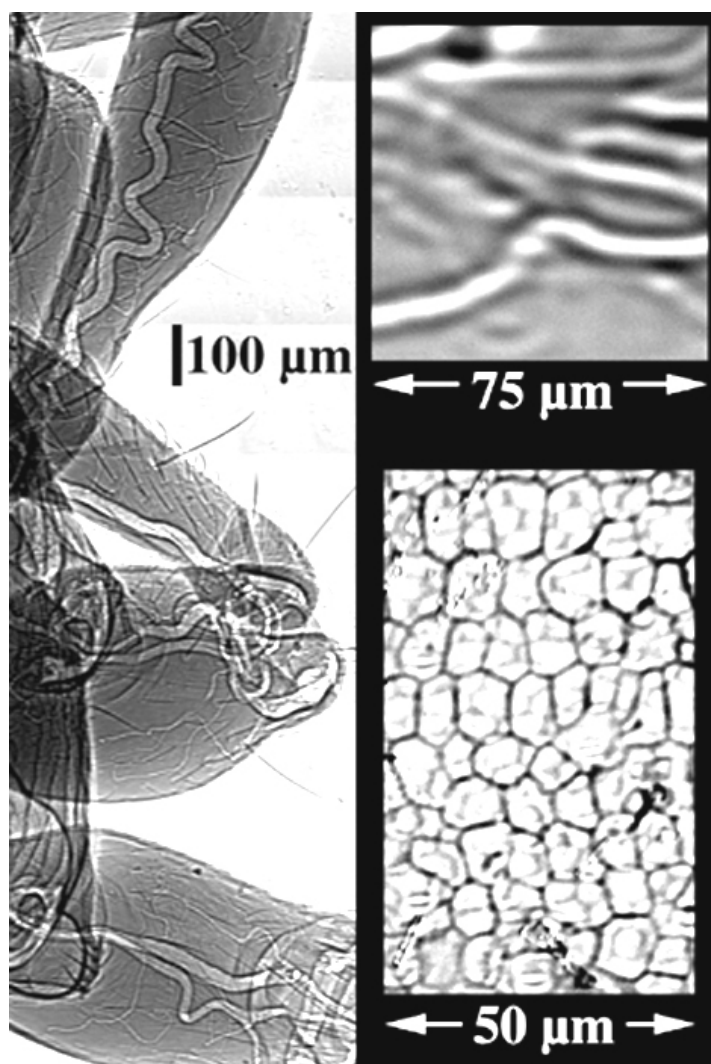


Fig. 2.17 – Esempi di risultati di microradiologia a contrasto di fase. A sinistra: immagine di una zampa d’insetto, con (a destra in alto) un dettaglio che mostra la risoluzione laterale; destra in basso: microradiografia di una foglia [4].

Infine, occorre sottolineare i primi tentativi di uso delle nuove tecniche in un modo tomografico ed, in effetti, immagini di tipo tomografico sono già state ottenute. I problemi di ricostruzione presentano difficoltà concettuali notevoli a causa dei cambiamenti di fase prodotti dall’interazione fra raggi x e oggetto. Non è quindi possibile prevedere tutto lo sviluppo futuro di queste linee: quello che è certo è che le loro applicazioni potenziali sono estremamente importanti tanto in biologia che in scienza dei materiali e in altri campi come l’archeometria o lo studio dei reperti artistici, storici e preistorici.

Infine, sono in corso [5] tentativi di ottenere immagini in contrasto di fase nel regime della diffusione anomala, cioè variando la lunghezza d’onda in prossimità di una delle soglie d’assorbimento x dei costituenti dell’oggetto. A norma delle trasformazioni di Kramers-Krönig, la rapida variazione in funzione della lunghezza d’onda del coefficiente d’assorbimento deve corrispondere a rapide variazioni dell’indice di rifrazione. Le corrispondenti modifiche nelle immagini potrebbero consentire l’analisi dei costituenti chimici dell’oggetto su scala microscopica.

I primi passi sono molto incoraggianti. Degli effetti sono stati rivelati ed in gran parte giustificati su una base teorica [5]. È quindi probabile che questa nuova tecnica aumenti ulteriormente l'impatto scientifico della radiologia a contrasto di fase.

#### *Il futuro: le sorgenti SASE-FEL*

Le nuove sorgenti pulsate di questo tipo consentiranno un ulteriore salto di qualità nelle tecniche radiologiche non convenzionali. Un elemento importante è l'ulteriore aumento della coerenza spaziale a basse lunghezze d'onda. D'altro canto, l'aspetto più positivo è la brevissima durata degli impulsi SASE-FEL e la loro alta energia.

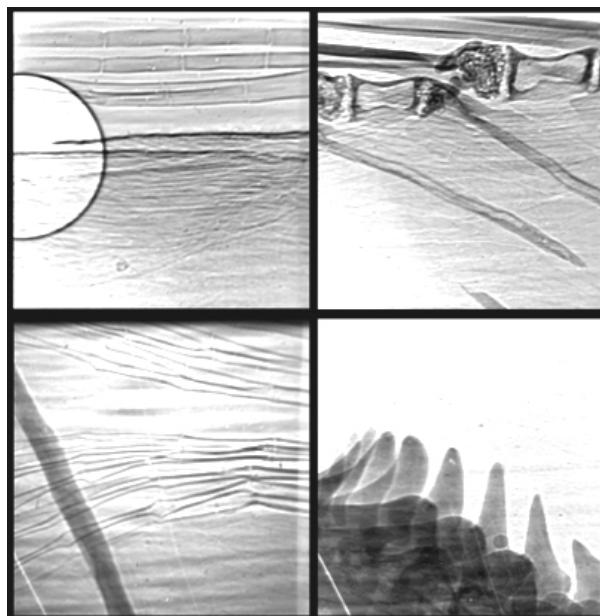


Fig. 2.18 – Microradiografie di dettagli di un pesce vivente della dimensione di circa 0.5 mm [4].

Queste caratteristiche porteranno ad esperimenti di radiologia non-convenzionale su scale temporali che sono irraggiungibili con le sorgenti di tipo sincrotrone. Allo stato attuale, gli esperimenti in tempo reale vengono condotti con tempi di scansione dell'ordine di alcuni millisecondi [2,3]. Ciò permette lo studio di una lunga serie di fenomeni biologici e chimici compatibili con questa risoluzione temporale – ma esclude fenomeni interessanti su scala più corta.

La risoluzione temporale non è ancora stata ottimizzata e potrebbe ragionevolmente migliorare con le sorgenti odierne, forse di 1-2 ordini di grandezza. Ulteriori miglioramenti incontrerebbero ostacoli probabilmente insormontabili. Tali ostacoli saranno automaticamente rimossi dalle sorgenti SASE-FEL. Per fortuna, i requisiti di coerenza temporale sono – come già menzionato – piuttosto limitati [2,3], e l'uso di impulsi anche molto corti non creerà problemi.

Grazie alla possibilità di accedere a nuove scale temporali, la gamma di fenomeni che potranno essere esplorati sarà radicalmente espansa. Nelle scale dai microsecondi ai nanosecondi si



trova infatti una serie di fenomeni importanti in chimica delle superfici e scienza dei materiali in generale. Su scale ancora più basse, si può ipotizzare l'uso di tecniche di formazione d'immagine fino alle centinaia di femtosecondi.

È chiaro che le strategie sperimentali dovranno essere completamente modificate. Infatti, l'energia depositata da ogni singolo impulso produrrà con ogni probabilità delle modifiche importanti su scala microscopica dell'oggetto. Si tratterà quindi di esplorare delle tecniche di presa d'immagini in tempo reale nelle quali il danneggiamento non è minimizzato ma studiato nella sua evoluzione.

Questo tipo di strategia “*one shot*” non è solo importante come tecnica di misura ma anche come studio per se. La problematica del danneggiamento da radiazione in regime di altissima intensità su brevissimi impulsi è infatti tutto da esplorare, e le scoperte potrebbero essere molto importanti. Per esempio, i processi di danneggiamento potrebbero rivelare aspetti positivi ed utilizzabili per la chimica industriale.

Occorre infine sottolineare che le sorgenti SASE-FEL avranno un importante ruolo anche in altre forme avanzate di radiologia non a contrasto di fase. Per esempio, le tecniche di radiologia a molte lunghezze d'onda e sottrazione digitale potranno essere implementate su scale temporali brevissime, mentre le tecniche tomografiche si gioveranno delle caratteristiche avanzate della sorgente. Inoltre, sarà possibile acquisire in tempi brevi un gran numero di immagini tomografiche.

Aggiungendosi alle metodologie a contrasto di fase, queste altre tecniche forniscono un'ulteriore garanzia per un impatto rivoluzionario dei SASE-FEL in radiologia.

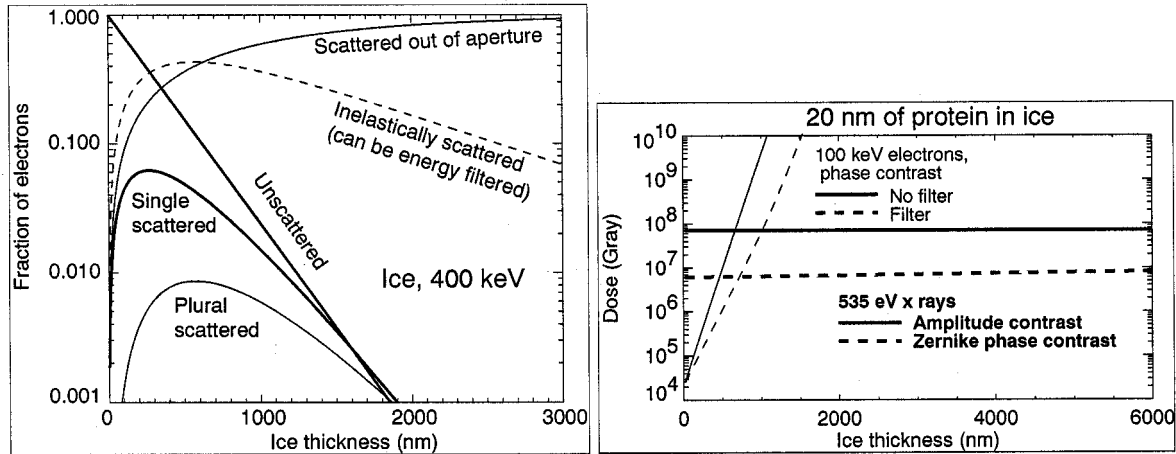
## **Bibliografia**

1. Arfelli F., Assante M., Bonvicini V., Bravin A., Cantatore G., Castelli E., Dalla Palma L., Di Michiel M., Longo R., Olivo A., Pani S., Pontoni D., Poropat P., Prest P., Rashevsky A., Tromba G., Vacchi A., Vallazza E., Zanconati F. *Physics Medicine and Biology* **43** 2845 (1998); Arfelli F., Bonvicini V., Bravin A., Cantatore G., Castelli E., Dalla Palma L., Di Michiel M., Fabrizioli M., Longo R., Menk RH, Olivo A, Pani S, Pontoni D, Poropat P, Prest M, Rashevsky A, Ratti M, Rigon L, Tromba G, Vacchi A, Vallazza E, Zanconati F *Radiology* **215** 286 (2000); Snigirev A., Snigireva I., Suvorov A., Kocsis M., Kohn V. *ESRF Newsletters* **24**, 23 (1995); Chapman D, Thomlinson W., Johnston R. E., Washburn D., Pisano E., Gmur N., Zhong Z., Menk R., Arfelli F., Sayers D. *Phys. Med. Biol.* **42**, 2774 (1997); Pogany A., Gao D. , Wilkins S. W. *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 2774 (1997); Wilkins S. W., Gureyev T. E., Gao D., Pogany A., Stevenson A. W. *Nature* **384**, 335 (1996); Nugent K. A., Gureyev T. E., Cookson D. F., Paganin D., Barnea Z. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2961 (1996); Chapman D., Thomlinson W., Johnston R. E., Washburn D.,

- Pisano E., Gmur N., Zhong Z., Menk R., Arfelli F., Sayers D., *Physics in Medicine and Biology* **42**, 2015 (1997)
2. Margaritondo G., Tromba G. *J. Appl. Phys.* **85**, 3406 (1999)
3. Hwu Y., Hsieh H. H., Lu M. J., Tsai W. L., Lin H. M., Goh W. C., Lai B., Je J. H., Kim C. K., Noh D. Y., Youn H. S., Tromba G., Margaritondo G. *J. Appl. Phys.* **86**, 4613 (1999);  
Margaritondo G. *Physics World* **11** 28 (1998)
4. Hwu Y., Tsai W. L., Hwang T. H., Lai B., Mancini D., Noh D. Y., Je J. H., Youn H. S., Bertolo M., Tromba G., Margaritondo G., unpublished.
5. Groso A., Margaritondo G., Hwu Y., Tsai W. L., Je J. H., Lai B. *Surf. Rev. Lett.* (in press).

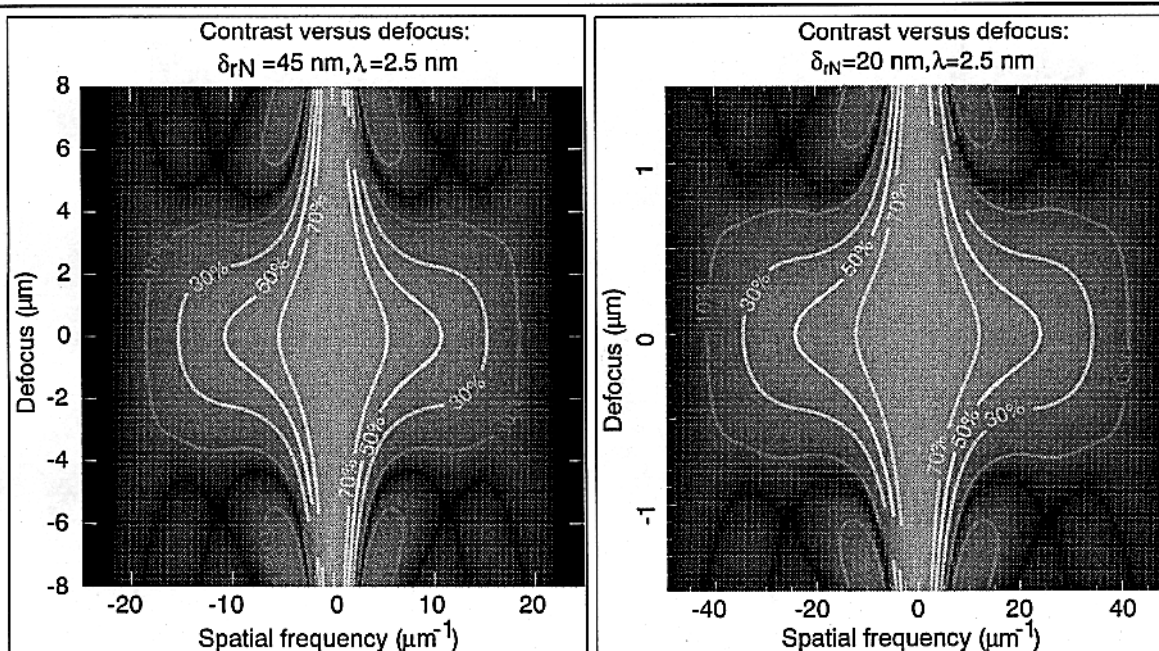
Uno degli esperimenti più eccitanti da realizzare sfruttando l’alta intensità di picco di una sorgente X-FEL è la registrazione di immagini di diffrazione di molecole singole con lo scopo di ricostruire su scala atomica molecole non cristallizzabili come le proteine di membrana. La fattibilità di tali esperimenti si basa sui calcoli di Neutze et *al.*, per cui si possono ottenere dati di diffrazione utili durante i primi 50 fsec dell’impulso X-FEL [1], e sulla dimostrazione di Miao et *al.* Che mostrano come dati di diffrazione X di campioni non cristallini possano essere ricostruiti per fornire immagini nello spazio reale [2]. I dati ottenuti da molte molecole dovrebbero essere classificati usando diversi metodi di analisi statistica simili a quelli sviluppati nella tomografia di particelle singole con microscopi elettronici. Il vantaggio potenziale di usare diffrazione in campo lontano piuttosto che immagini elettroniche è dovuto principalmente a due motivi; il primo è che gli elettroni si respingono mentre i fotoni no, cosicché i fotoni possono essere impiegati per ottenere immagini con impulsi ultracorti prima che il danno da radiazione sia evidente; il secondo è che le immagini elettroniche devono prevedere la determinazione della posizione delle molecole rispetto al piano focale in modo che possa essere valutata ed applicata ai dati la funzione di trasferimento del contrasto, mentre i dati di diffrazione non hanno bisogno di tale stima e correzione. L’impatto potenziale dell’X-FEL per ottenere immagini di molecole è enorme, e ci sono numerosi progetti per esperimenti sulle future sorgenti di questo tipo.

A Stony Brook siamo molto interessati a sviluppare tecniche di “imaging” su larga scala basate sulla diffrazione. La tomografia con microscopio elettronico di campioni biologici idrati congelati è stata condotta con molto successo: la ricostruzione delle cellule procariote è stata ottenuta con una risoluzione di circa 10 nm [3], e si sta cercando di localizzare le proteine all’interno del volume [4]. Tuttavia, lo scattering multiplo limita l’applicabilità di questo approccio a campioni di spessore non superiore al micron, anche se si usano opportuni filtri di energia (vedi Fig. 2.19) [5]. Come conseguenza la microscopia nei raggi X continua ad essere l’unico metodo che permette di risolvere immagini al di sotto di 100 nm, come ad esempio di cellule eucariote, che hanno una dimensione tipica di 5-20 micron.



**Fig. 2.19 (a sinistra)** Elettroni che subiscono una diffusione anelastica e una diffusione elastica multipla in campioni spessi. Per immagini a contrasto di fase, si vorrebbe combinare solo elettroni non diffusi ed elettroni che hanno subito solo una diffusione singola, che rappresentano una frazione piccola in spessori di ghiaccio da 1 micron o meno. Perciò la dose di radiazione richiesta per ottenere immagini di campioni in layers spessi di ghiaccio aumenta rapidamente; in confronto le immagini di raggi-X richiedono una dose più alta in layers sottili di ghiaccio ma è relativamente insensibile allo spessore del layer di ghiaccio, anche fino a dimensioni di una intera cella.

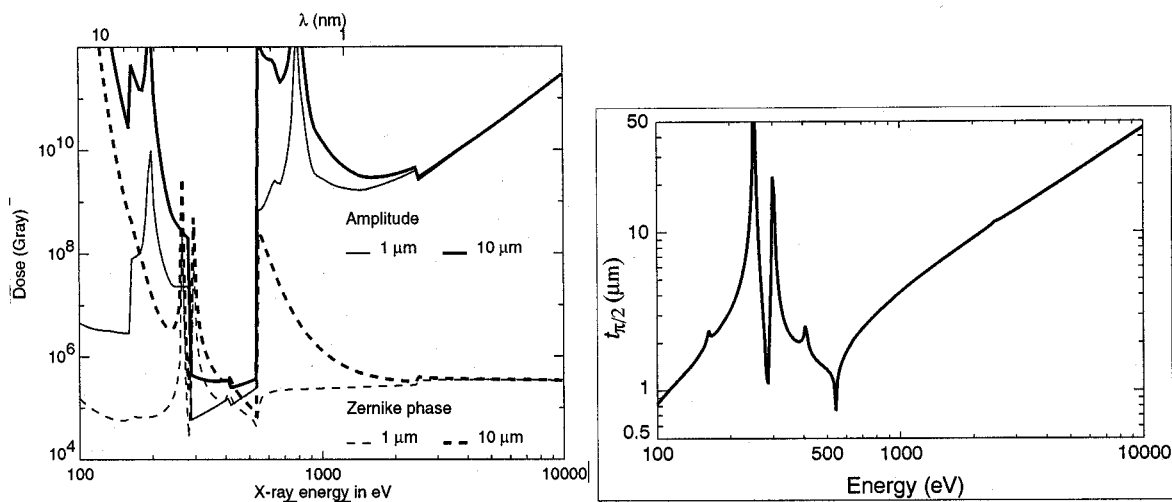
La tomografia nei microscopi a raggi X molli è stata sviluppata per fornire immagini di cellule idratate congelate con risoluzione 3D migliore di 100 nm [6,7]. Gli attuali sistemi sperimentali di ALS e BESSY II permettono di ottenere immagini con radiazione incoerente e con ottiche del tipo zone plate in alcune ore. Mentre questi microscopi possono fornire immagini 2D al limite della risoluzione delle ottiche zone plate (che è dell'ordine di 20-40 nm [8,9]), l'ipotesi usata nella tomografia convenzionale che il campione giaccia completamente all'interno della profondità di fuoco è violata quanto più ci si spinge verso risoluzioni più alte. Se  $\delta_{rN}$  è la dimensione più piccola della zone plate,  $\delta_{rN}/2$  è la migliore risoluzione trasversa ottenibile, mentre la risoluzione longitudinale è  $4\delta_{rN}^2/\lambda$ . Come mostrato in Fig. 2.20, ciò significa che, nella regione della finestra dell'acqua, spingere la risoluzione spaziale per la tomografia elettronica verso i 10 nm porta ad un limite della profondità di fuoco di 1 micron, che è uno spessore accessibile per tale tipo di tomografia.



**Fig. 2.20** Modulazione della funzione di trasferimento tridimensionale per il contrasto di assorbimento nell'immagine di raggi X con due diverse risoluzioni  $\delta_{rN}$  (45 e 20 nm) di "zone plate" per un'energia dei fotoni di 500 eV. La profondità di fuoco diminuisce con il quadrato dell'aumento in risoluzione trasversa.

Si possono usare due metodi per superare il limite di profondità di fuoco nella tomografia convenzionale a retroproiezione. Uno è quello di usare la tecnica diffrattiva sopra menzionata, dove la diffrazione in campo lontano non richiede foceggiamento. Mentre le molecole possono essere considerate tutte uguali, le cellule intere non lo sono, cosicché tale approccio richiede l'acquisizione di diverse immagini di diffrazione a diversi angoli dello stesso campione idratato e congelato. Un altro metodo è quello di usare la tomografia diffrattiva, in cui viene rivelato un ologramma del campione per ogni angolo, dalla cui analisi si risale all'immagine tridimensionale [10, 11]. Le immagini basate sulla diffrazione hanno il vantaggio che sia le ottiche che il rivelatore non necessariamente pongono un limite alla risoluzione dell'immagine ricostruita, anche se ci sono domande ancora senza completa risposta sulla reale validità della ricostruzione di un sistema complesso come un'intera cellula biologica.

Entrambi i metodi sono sensibili sia al contrasto di fase che di assorbimento. Si possono quindi considerare energie oltre il tradizionale intervallo 280-540 eV della finestra dell'acqua. Come è mostrato in Fig. 2.21, fotoni con energia di 2-3 keV diventano particolarmente interessanti da questo punto di vista. Energie più alte possono quindi essere considerate, anche se il contrasto di fase diminuisce con l'energia. Inoltre, se si utilizzano zone plate, bisogna considerare che lo spessore longitudinale delle zone plate dovrebbe aumentare con l'energia dei fotoni, e ciò può essere una seria limitazione nella costruzione di tali ottiche.



**Fig. 2.21 : Sinistra: minima dose richiesta per un'immagine con 20 nm di risoluzione di una proteina in acqua con diverse modalità. Si noti che questo calcolo prefigura una efficienza del 100 % nel processo di immagine. Destra: Spessore richiesto per le proteine in acqua per raggiungere uno shift di fase di  $\pi/2$ . Per ottenere un alto contrasto da strutture piccole, l'energia del fotone non deve essere troppo grande.**

Mentre gli esperimenti su molecole singole con un singolo impulso quanto più intenso possibile necessitano di rivelare un segnale di diffrazione in 50 fsec, prima che la molecola esploda, gli esperimenti sopra discussi richiedono che il campione sopravviva durante l'intera sequenza di registrazione dei diffrattogrammi. In questo caso il parametro importante è la brillantezza media, ed infatti gli esperimenti del nostro gruppo sono realizzati utilizzando la radiazione emessa da un onduttore presso il laboratorio di Brookhaven. In tali esperimenti vengono presi diffrattogrammi con frequenza spaziale di  $1/(2 \times 50 \text{ nm})$  in circa 10 minuti. Con la raccolta automatizzata dei diffrattogrammi si spera di acquisire una serie completa ai diversi angoli di esposizione in circa 15 ore. Questo è il tempo tollerabile in cui è possibile mantenere un campione idratato e congelato libero da contaminazione. Tale tempo può essere ridotto di un fattore 10-20 utilizzando sorgenti di luce di sincrotrone di terza generazione come ALS o BESSI II. Tuttavia esistono ancora certi limiti alla miglior risoluzione. Poiché l'illuminazione richiesta scala molto rapidamente con il miglioramento della risoluzione (noi crediamo che il fattore di scala sia di circa sei ordini di grandezza [12]), notevoli miglioramenti nella risoluzione spaziale potrebbero ottenersi dall'utilizzo di sorgenti con brillantezza media molto più alta. Un modo ideale di operazione sarebbe quello di avere una sorgente con il fascio focalizzato ad un diametro di 10-50 micron, in modo da illuminare una cellula completamente, ed un'intensità del fascio appena al di sotto del limite di danno irreversibile per una cellula idratata e congelata. Il nostro gruppo (Beetz, Jacobsen, Kirz, Lima, Sayre, Shapiro e Miao) è attualmente impegnato nell'ottenere immagini di campioni biologici con tecniche olografiche e diffrattometriche con raggi X, avendo come obiettivo di dimostrare l'applicabilità del metodo utilizzando le sorgenti esistenti, per poi applicarlo estesamente tramite l'utilizzo delle sorgenti del tipo X-FEL.

1. Neutze, R., *et al.*, *Potential for biomolecular imaging with femtosecond X-ray pulses*. Nature, 2000. **406**: p. 752-757.
2. Miao, J., *et al.*, *An extension of the methods of x-ray crystallography to allow imaging of micron-size non-crystalline specimens*. Nature, 1999. **400**: p. 342-344.
3. Grimm, R., *et al.*, *Electron tomography of ice-embedded prokaryotic cells*. Biophysical Journal, 1998. **74**: p. 1031-1042.
4. Bohm, J., *et al.*, *Toward detecting and identifying macromolecules in a cellular context: Template matching applied to electron tomograms*. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2000. **97**(26): p. 14245-14250.
5. Jacobsen, C., R. Medenwaldt, and S. Williams, *A perspective on biological x-ray and electron microscopy*, in *X-ray Microscopy and Spectromicroscopy*, J. Thieme, *et al.*, Editors. 1998, Springer-Verlag: Berlin. p. II-93--102.
6. Wang, Y., *et al.*, *Soft x-ray microscopy with a cryo STXM: II. Tomography*. Journal of Microscopy, 2000. **197**: p. 80-93.
7. Weiß, D., *et al.*, *Computed tomography of cryogenic biological specimens based on x-ray microscopic images*. Ultramicroscopy, 2000. **84**: p. 185-197.
8. Spector, S., C. Jacobsen, and D. Tennant, *Process optimization for production of sub-20 nm soft x-ray zone plates*. Journal of Vacuum Science and Technology, 1997. **B 15**(6): p. 2872--2876.
9. Peuker, M., *High-efficiency nickel phase zone plates with 20 nm minimum outermost zone width*. Applied Physics Letters, 2001. **78**(15): p. 2208-2210.
10. Wolf, E., *Three-dimensional structure determination of semi-transparent objects from holographic data*. Optics Communications, 1969. **1**: p. 153--156.
11. Devaney, A.J., *Structure determination from intensity measurements in scattering experiments*. Physical Review Letters, 1989. **62**(20): p. 2385--2388.
12. Sayre, D. and H.N. Chapman, *X-Ray Microscopy*. Acta Crystallographica A, 1995. **51**: p. 237--252.

### *Generalità*

La tecnica del “nanoimaging” è definita come l’acquisizione di immagini da un piccolo volume con dimensione laterale minore di 100nm. Attualmente, esiste un considerevole interesse nella determinazione delle proprietà dei materiali su questa ridottissima scala. In particolare, strutture artificiali come quelle incontrate nei moderni circuiti integrati rappresentano un fertile campo di ricerca per la fisica dello stato solido, la scienza dei materiali, la chimica e la tecnologia. Nei prossimi anni le dimensioni delle strutture in questi circuiti verranno ridotte a meno di 70nm, quindi si porranno differenti questioni a proposito delle proprietà dei materiali e dei processi. Un esempio classico è la struttura del disilicato di titanio ( $\text{TiSi}_2$ ) [1], un materiale usato come contatto ohmico a bassa resistenza elettrica nella tecnologia MOS. Il  $\text{TiSi}_2$  è formato mediante reazione locale tra il Si ed il Ti depositato attraverso un foro di contatto; per tale motivo la reazione è condotta in un ambiente circoscritto, dove cambiamenti di volume dovuti alla reazione creano degli sforzi residui. Questo può inibire la reazione di conversione, o favorire una fase a scapito di un’altra. Un altro esempio è lo studio dell’elettromigrazione nella lega rame-alluminio [2,3] e, più recentemente, le interconnessioni di rame [4], dove le linee di connessione sono sepolte in uno strato isolante di materiale vetroso con uno spessore totale maggiore di 1 micron. Perciò lo sforzo residuo dipende fortemente dal rendimento di processi quali l’elettromigrazione e li influenza.

Attualmente gli esperimenti vengono realizzati usando sia tecniche di microimaging che di microdiffrazione da volumi delle dimensioni di circa 100nm; la dimensione nel piano è determinata dal fascio X della microsonda, focalizzata usando delle lenti di Fresnel [2,3] e la dimensione verticale è data dalla linea stessa. I raggi X hanno la caratteristica peculiare di penetrare profondamente attraverso lo strato isolante fornendo, quindi, un’immagine della linea di interconnessione o del foro di contatto in-situ. Non esistono altre tecniche che presentino le stesse capacità: le tecniche di microscopia a sonda locale sono limitate a strutture di superficie o prossime alla superficie e non possono misurare direttamente lo sforzo e la struttura cristallina. Di particolare interesse è la capacità di eseguire misure di microfluorescenza e microdiffrazione dalla stessa area, permettendo la simultanea caratterizzazione chimica e strutturale; questo è estremamente importante quando, per esempio, si esegue la scansione di una struttura su una lunga linea di interconnessione. Inoltre, si può anche utilizzare la spettroscopia NEXAFS per determinare lo stato chimico locale qualora si possano misurare opportune soglie di assorbimento.

Le sorgenti ad alta brillantezza nelle tecniche di microscopia sono di incalcolabile importanza. Infatti, il volume minimo nello spazio delle fasi dato dal limite di diffrazione è proporzionale al cubo della lunghezza d’onda. Con lunghezze d’onda di  $1\text{\AA}$  tale volume risulta molto limitato.



Persino con sorgenti brillanti come un onduttore della facility “APS” risulta difficoltoso lavorare a risoluzioni di 100nm. Sono state sviluppate tecniche per rendere efficiente la focalizzazione con “zone plates” anche a dimensioni di 50nm, ma gli esperimenti sono limitati dalla brillantezza della sorgente che conduce a tempi di acquisizione inaccettabilmente lunghi. Una sorgente ultra-brillante come un X-FEL permetterà esperimenti di nanoimaging, e la struttura temporale del fascio potrebbe permettere anche studi in funzione del tempo.

### *Applicazioni*

L’interesse principale potrebbe essere nel campo delle strutture di semiconduttori, in particolare in dispositivi basati sul silicio. Anche altri sistemi quali semiconduttori III-V (GaN, eterogiunzioni) e II-VI (laser ZnSe) potranno rivestire grande interesse. La stazione sperimentale verrà impiegata per studiare sistemi di specifico interesse tecnologico quali  $\text{TiSi}_2$ , interconnessioni di rame, strati barriera di TiN sia di strutture di test che di campioni effettivamente in produzione. Ci si attende che diverse collaborazioni industriali possano supportare il funzionamento della stazione sperimentale.

### *Schema sperimentale*

Un laser ad elettroni liberi operante nella regione dei raggi X potrebbe risolvere il problema della brillantezza, permettendo di lavorare al limite di diffrazione delle moderne ottiche. Si vorrebbe, quindi, proporre un programma di ricerca basato sull’implementazione del nanoimaging, capace di effettuare le seguenti attività:

- diffrazione di raggi X
- fluorescenza X
- NEXAFS
- EXAFS

su volumi di  $(50 \text{ nm})^3$ . Questo sarà ottenuto sviluppando una linea di luce focalizzante che impieghi delle zone plates avanzate, basate sulla tecnologia del tungsteno, combinate con un opportuno monocromatore. L’acquisizione dei dati comprenderà una CCD ad alta risoluzione, una camera a diffrazione ed un rivelatore di fluorescenza, abbinati ad un micromanipolatore per il posizionamento e la scansione del campione.

### **Bibliografia**

1. S. Singh, H. Solak, N. Krasnoperov, F. Cerrina, A. Cossy, J. Diaz, J. Stohr and M. Samant, An X-ray spectromicroscopic study of the local structure of patterned titanium silicide, 1997, Appl. Phys. Lett. **71**, 55 (1997)

2. H. H. Solak, G. F. Lorusso, S. Singh-Gasson, and F. Cerrina. *An x-ray spectromicroscopic study of electromigration in patterned Al(Cu) Lines*, Appl. Phys. Letters **74**, 22 (1999)
3. H. H. Solak, Y. Vladimirsky, F. Cerrina, B. Lai, W. Yun, Z. Cai, P. Ilinski, D. Legnini, and W. Rodrigues, *Measurement of Strain in Al-Cu Interconnect Lines with X-ray Microdiffraction*, J. Appl. Phys. **86**, 884 (1999)
4. X. Zhang, H. Solak, F. Cerrina, B. Lai, Z. Cai, P. Ilinski, D. Legnini, W. Rodrigues. *X-ray microdiffraction study of Cu interconnects*, Appl. Phys.Lett. **76**, 315 (1999)

### Nanolitografia

La linea di luce a bassa energia dei fotoni della sorgente SPARX, compresa tra 10nm e 15 nm circa, presenta interessanti caratteristiche per studi di micro-Litografia nell'Estremo Ultra-Violetto (EUVL). L'EUVL rappresenta oggi una delle tecnologie più promettenti per raggiungere una risoluzione spaziale migliore di 70 nm [1,2,3]. In questo tipo di litografia, il disegno circuitale dei chips su wafer di silicio è effettuato attraverso la proiezione di una maschera mediante un opportuno sistema ottico. Le lunghezze d'onda comprese tra 13 e 14 nm sono l'unica regione dello spettro EUV in cui si riesca a fabbricare specchi con un valore di riflettività (circa 70%) di interesse per applicazioni industriali. Proprio grazie a questa corta lunghezza d'onda della radiazione usata è possibile proiettare il disegno della maschera sul wafer con una risoluzione spaziale inferiore ai 70 nm, come già dimostrato in esperimenti preliminari. Nel mondo sono già in atto diversi consorzi di ricerca sulla EUVL, in ciascuno dei quali sono stati investiti l'equivalente di centinaia di milioni di Euro. In particolare sono da citare:

USA: consorzio industriale. LLC (Motorola, Intel, AMD, Infineon, Micron) + consorzio di enti di ricerca VNL (Laboratori Nazionali Sandia, Berkeley e Livermore).

Giappone: progetto ASET (Nikon) e CANON.

Europa: consorzio industriale. MEDEA-plus (ASML, Philips, Zeiss, ecc.) + progetto europeo EUNETE in fase di sottomissione (a febbraio 2002).

Ciascuno di questi tre consorzi si propone, in modo indipendente, di realizzare un dispositivo di fabbricazione dei microchips (*stepper*) con tecnologia EUVL entro il 2006 basato su una sorgente EUV di tipo laser-plasma. La "roadmap" per la microlitografia nello sviluppo dei dispositivi semiconduttori è mostrata in Fig.2.22.

## **International Technology Roadmap for Semiconductors (2001)**

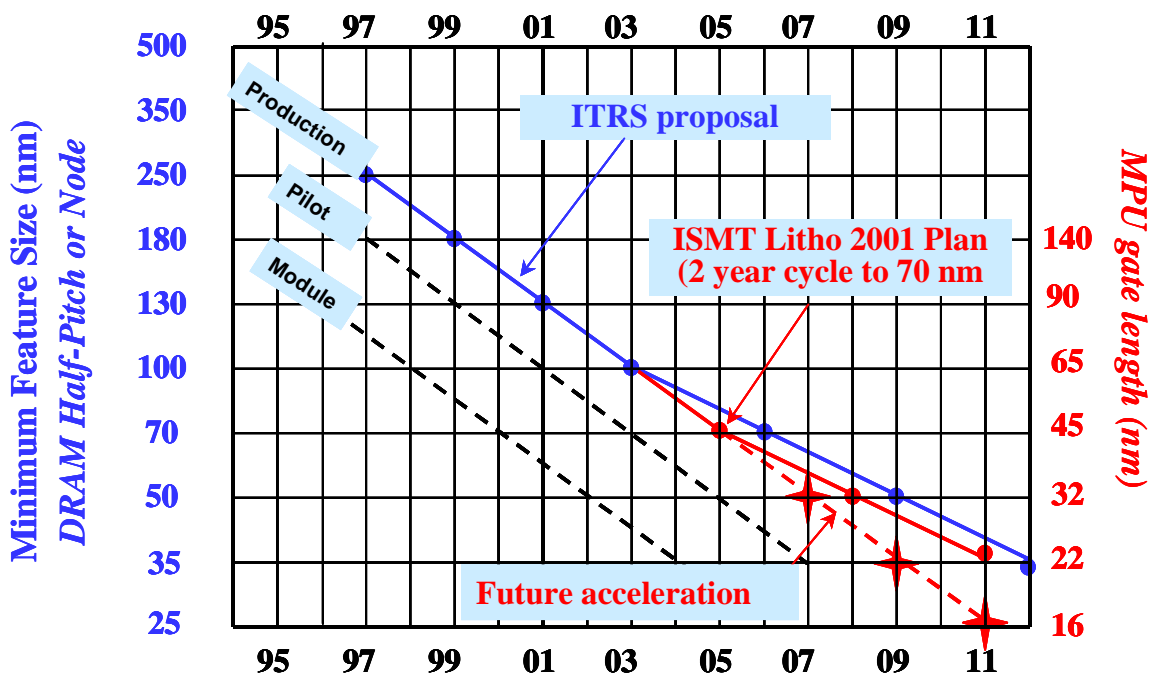


Fig. 2.22 – Si prevede che la litografia ottica venga applicata oltre i 100 nm e i 70 nm (DRAM Half-Pitch) mediante strumenti operanti alle lunghezze d’onda di 193 e 157 nm rispettivamente. Dettagli di 50 nm e 35 nm richiederanno l’uso di strumenti di nuova generazione, Next Generation Lithography (NGL). La tecnologia candidata a tale scopo nei programmi europei MEDEA+ e IST è la litografia nell’estremo ultravioletto (EUV)

Il livello più avanzato di ricerca è attualmente stato raggiunto dal consorzio USA [1,4] che ha realizzato uno stepper-prototipo (chiamato  $\alpha$ -tool) con una sorgente EUV da 4 W @ 13.5 nm in una banda spettrale del 2.2%. La sorgente è di tipo a laser-plasma in cui il laser è a Neodimio pompato a diodi (1.7 kW @ 6 kHz) ed il target per la formazione del plasma è costituito da un getto continuo supersonico di vapori di Xe. L’ottica di proiezione è costituita da 4 specchi secondo lo schema “ring-field” [5,6] ovvero secondo il principio di illuminare la maschera con un fascio sagomato a forma di arco di spessore pari a circa 2 mm e lungo quanto la maschera (circa 10 cm). La riproduzione dell’intera maschera sul wafer avviene quindi mediante una scansione unidimensionale, in cui la maschera ed il wafer vengono traslati in direzioni opposte ed a velocità il cui rapporto è pari a quello della fotoriproduzione (tipicamente 1:4 , per ottenere sul wafer un “campo” di riproduzione di 2.5X2.5 cm<sup>2</sup> quale quello attualmente impiegato in microlitografia per la costruzione dei microchips).

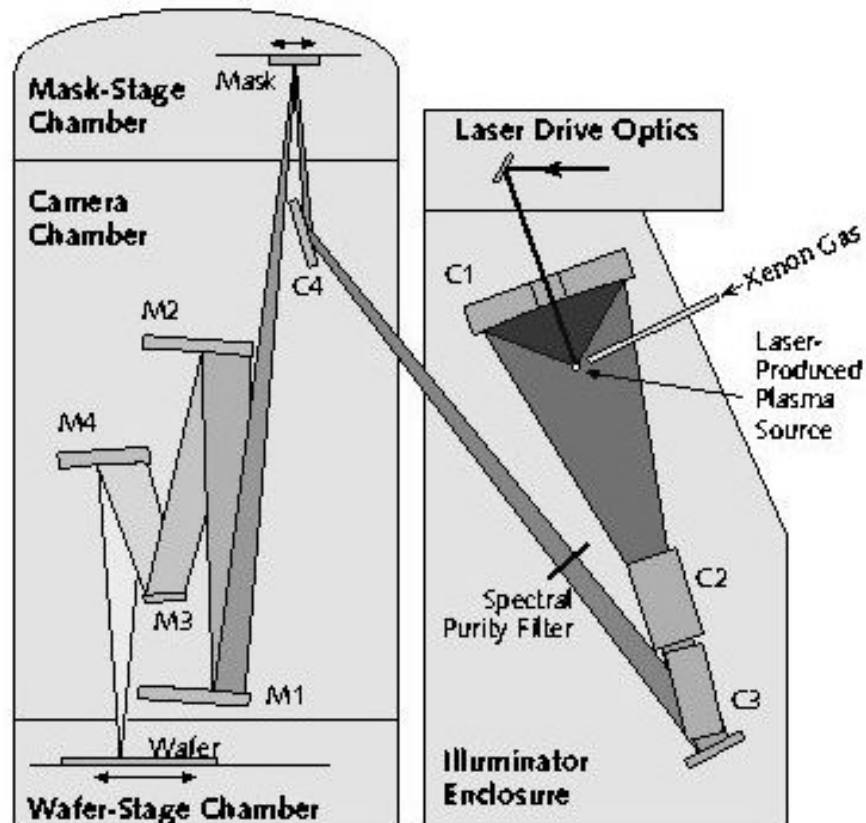
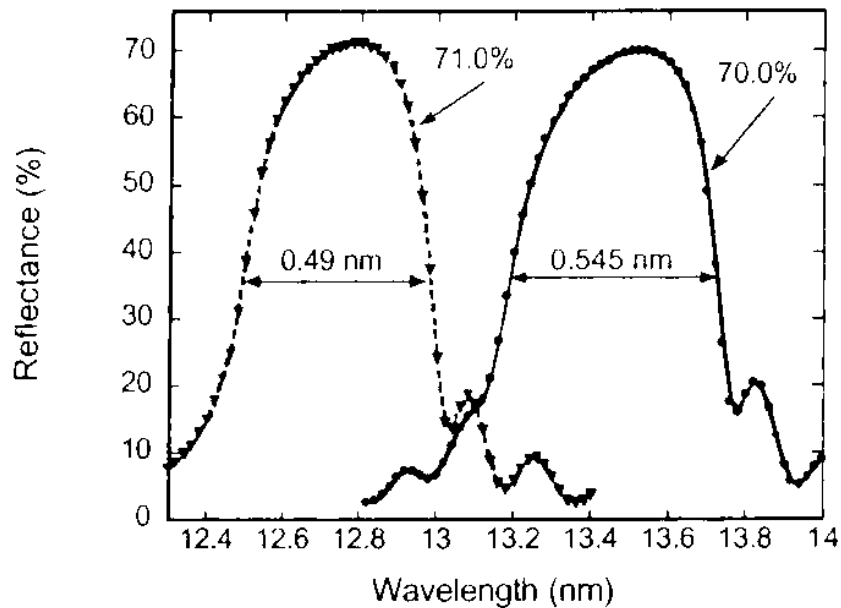


Fig. 2.23 – Dispositivo per micro-litografia EUV, detto  $\alpha$ -tool, sviluppato dal consorzio americano LLC+VNL. Lo specchio condensatore, C1, raccoglie la radiazione EUV su un angolo di 1.8 sr. Gli specchi C2 e C3 trasformano il fascio in geometria ring-field. Gli specchi di proiezione M1, M2, M3 ed M4 proiettano sul wafer l'immagine della maschera con una riduzione 1:4. L' $\alpha$ -tool è suddiviso in 4 camere separate (sorgente, maschera, ottica di proiezione, wafer) così che gli inquinanti prodotti da ciascuna camera ovvero i detriti della laser-plasma, i residui del sistema di traslazione, il carbonio degassato dalle pareti di acciaio e le molecole degassate dal photoresist del wafer, rispettivamente, non passino alle altre.

In figura 2.23 è riportato uno schema del suddetto prototipo  $\alpha$ -tool tratto da [1] mentre in figura 3 è riportata la curva di riflettività dei migliori specchi multilayer nell'EUV realizzati fino ad oggi [7]. Usando sorgenti di tipo laser-plasma, cioè sorgenti ad ampio spettro di emissione, è stata universalmente riconosciuta come lunghezza d'onda ottimale per la EUVL (basata sugli specchi multilayer di Mo/Si) il valore di 13.5 nm, quello cioè in cui risulta ottimizzata la riflettività integrata del sistema ottico (detta anche "throughput" del sistema) ottenuta come  $\int R^N(\lambda)d\lambda$ , dove  $R(\lambda)$  è la riflettività del singolo specchio e N è il numero complessivo di specchi del sistema ottico, dalla sorgente al wafer (inclusa la maschera). L'uso di una sorgente monocromatica potrebbe modificare questa scelta, come evidenziato in fig. 2.24, dato che diviene più importante la riflettività di picco anziché quella integrata.



**Fig. 2.24** – Curva di riflettività misurata su specchi multilayer Mo/Si realizzati secondo ref. [7] ed ottimizzati per riflettere a 12.8 e a 13.5 nm.

Tra gli strati di Mo e di Si (50 periodi Mo/Si in tutto) è stato depositato uno strato di isolamento di  $B_4C$  (spesso pochi angstrom) per evitare problemi di diffusione. La minor riflettività a 13.5 nm rispetto ai 12.8 è largamente ricompensata da una maggiore larghezza di banda. Questo è importante in sorgenti EUV ad ampio spettro come le laser-plasma.

Le applicazioni industriali della litografia EUV richiedono caratteristiche della sorgente EUV attualmente non raggiungibili dalle sorgenti laser-plasma, ma che potrebbero potenzialmente essere raggiunte da una sorgente di tipo FEL. In particolare per la sorgente si richiede (secondo le indicazioni del consorzio europeo MEDEA+):

Potenza media= 50-150 W in 2.2% B.W. @ 13.5 nm, corrispondente all'esposizione di circa 60 wafer-layer l'ora.

Fluttuazione della dose per layer: < 2%

Frequenza di ripetizione > 5 kHz

Etendue: 0.4 – 0.8 mm<sup>2</sup>·sr

Lifetime: 10<sup>11</sup> shots (un anno @ 5 kHz)

Inoltre le sorgenti EUV di tipo laser-plasma (cioè le più potenti fino ad oggi disponibili) sono necessariamente emettitrici di detriti, ovvero di clusters metallici e di singoli atomi provenienti dal bersaglio in cui si è generato il plasma o dai componenti meccanici (ad esempio dall'ugello da cui viene emesso il getto di vapore di Xe [4]) che si trovano in prossimità del bersaglio. Questi detriti limitano seriamente la vita media delle delicatissime e costosissime ottiche multilayer; in particolare è limitata la durata del primo specchio (detto condensatore), che deve raccogliere la radiazione EUV dalla sorgente ed inviarla alla maschera.

Le prestazioni di SPARX previste per la linea di luce di bassa energia consentono il raggiungimento di livelli di potenza media, emessa nell'EUV a 12-14 nm, prossimi ai 50 Watt. Tali prestazioni si possono raggiungere operando il laser del fotocatodo in una modalità che preveda un treno di 35 impulsi alla frequenza di mode-locking di 100 MHz ripetuto alla frequenza di 100 Hz. In tale configurazione la sorgente si presenta come uno strumento di prestazioni elevate per esperimenti pilota su componenti e sistemi di EUVL, che potrebbero anche condurre alla realizzazione di una sorgente dedicata di dimensioni e costi adeguati [8]. Una simile sorgente eliminerebbe inoltre il problema dei detriti, uno dei maggiori problemi nell'attuale sviluppo di prototipi di stepper per litografia EUV basati sulle sorgenti laser-plasma. Infine, l'alta monocromaticità di un fascio laser EUV ridurrebbe drasticamente i problemi di sovraccarico termico e di fotoablazione dello specchio condensatore da parte di radiazione "out-of-band", cioè da parte della radiazione inutile che le sorgenti di tipo laser-plasma emettono fuori della banda di riflettività degli specchi.

La ricerca che potrebbe venir condotta nel settore dell'EUVL si articola in più direzioni:

- 1) Studio e sperimentazione di un dispositivo ottico di diffusione che porti il fascio EUV emesso dal FEL ad una geometria di tipo ring-field e con una densità di potenza sopportabile dagli specchi multilayer Mo/Si per radiazione nell'intervallo 12-13 nm.
- 2) Sperimentazione di fotoriproduzioni nanolitografiche su wafer, ottenute con la radiazione monocromatica (a 12-14 nm) del laser FEL.
- 3) Valutazione dei vantaggi/svantaggi dell'illuminamento di uno stepper EUV tramite radiazione da FEL rispetto all'illuminamento incoerente tramite sorgenti di tipo laser-plasma.
- 4) Studio di fattibilità di un laser FEL ottimizzato per l'applicazione industriale in litografia EUV.

In particolare i punti 2) e 3) potranno essere condotti in collaborazione con laboratori internazionali di ricerca sulla EUVL e con una delle maggiori ditte di microelettronica presenti in Europa (ad esempio la ST-Microelectronics di Milano).

### **Bibliografia:**

1. Keit Diefendorff. "Extreme Lithography: INTEL backs EUV for Next-Generation Lithography", Microprocessor Report, 6/19/2000 ([www.MPRonline.com](http://www.MPRonline.com)).
2. David Attwood, "Soft X-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications", Cambridge University Press, 1999.

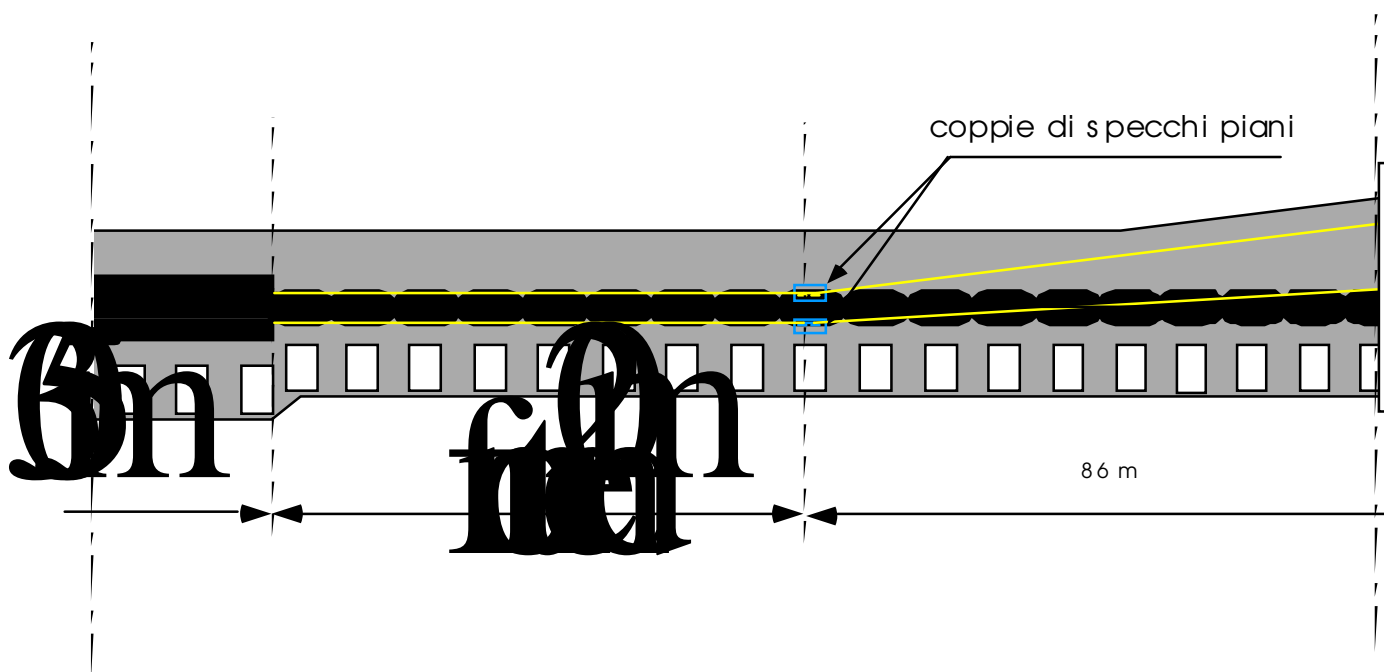
3. R.H. Stulen and D.W. Sweeney, "Extreme ultraviolet lithography", IEE Journal of Quantum Electronics **35**, 694 (1999)
4. G.D. Kubiak et al., "High-power source and illumination system for extreme ultraviolet lithography", Proc. SPIE **3767**, 136 (1999).
5. A.A. Macdowell et al.: "Soft X-ray projection imaging with a 1/1 ring-field optic", Appl. Optics, **32**, 7072, (1993)
6. H.N. Chapman and K.A. Nugent: "A novel condenser for EUV Lithography ring-field projection optics", Contribution to the Int. Conf. On EUV, X-ray and Neutron Optics and Sources, Denver, Colorado July 1999, SPIE **3767**, 225 (1999)
7. Saša Bjt et al.: "Improved reflectance and stability of Mo/Si multilayers", Contr. To the Int. Conf. San Diego July 2001, SPIE Vol. **4506**, (2001)
8. D. Dattoli, A.Doria, G.P.Gallerano, L.Giannessi, K.Hesch, H.Moser, P.L.Ottaviani, E.Pellegrin, R.Rossmannith, R.Steiniger, W.Saile, J.Wust, "Extreeme ultraviolet (EUV) sources for lithography based on synchrotron radiation", Nucl. Instr. And Meth. A **474**, 259 (2001)

La soluzione proposta per l'area sperimentale è illustrata nella figura 2.25.



**Fig. 2.25. Schema dell'area sperimentale**

Gli ondulatori terminano a 305 m dall'inizio del bunker e a partire da questo punto sono previsti 20 metri dove saranno collocati diversi dispositivi: i pozzetti di spegnimento dei fasci di elettroni, gli assorbitori di potenza, le valvole di sezionamento, i "beam stopper" della radiazione gamma, i "beam shutter" dei fasci laser, i "pin-hole" per la definizione del cono centrale dei due fasci e per la separazione della radiazione SASE dal fondo di radiazione, le valvole di sicurezza a chiusura rapida, le linee di ritardo, le schermature in piombo e in cemento, ecc. Alla fine di questo tratto che, nella figura 2.26 chiamiamo "front-end"

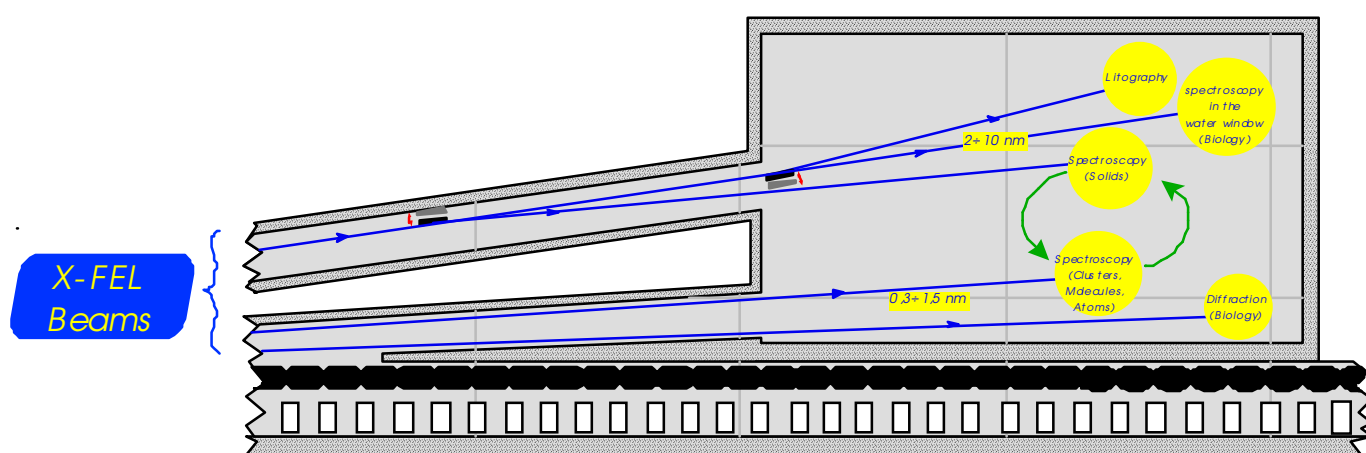


**Fig: 2.26 Planimetria del linac e dell'area sperimentale**



i due fasci di luce potranno essere deflessi da uno o più (in questa ipotesi, due) specchi piani a incidenza radente opportunamente raffreddati. Date le dimensioni e la divergenza dei fasci di luce questi primi specchi risulteranno relativamente corti (10÷15 cm) anche per angoli di radenza inferiori al grado permettendo così, con una opportuna scelta del coating, di operare in condizioni di riflessione totale. Il fascio di luce ad alta energia dovrà essere deviato di almeno 4° rispetto all'asse dell'ondulatore; il fascio a bassa energia sarà deviato di 8°.

Dopo la prima deflessione, uno specchio piano distribuirà il fascio ad alta energia su due linee che entreranno nella sala sperimentale a 86 m dall'uscita degli ondulatori (fig. 3)



**Fig: 2. 27. Particolare dello schema della sala sperimentale**

lasciando spazio sufficiente per le stazioni sperimentali. Il fascio di energia più bassa, sarà anch'esso diviso in due tramite uno specchio, e uno dei due raggi sarà, poi, ulteriormente diviso in due. Si avranno così tre linee per raggi X molli e due linee per raggi X duri che alimenteranno altrettante stazioni sperimentali che potranno operare contemporaneamente dividendosi il flusso dei due ondulatori oppure, con una combinazione opportuna degli specchi, potranno sfruttare ciascuna tutta o quasi la radiazione prodotta dalle sorgenti.

Questi specchi, oltre a dirigere la luce in luoghi dove possa essere agevolmente utilizzata, svolgono anche un'importante funzione di sicurezza in quanto separano il fascio della luce da quello della radiazione di Bremsstrahlung.

Un requisito stringente al quale devono soddisfare gli elementi ottici di una linea di luce di sincrotrone è quello di indurre il minimo degrado possibile nella brillantezza della sorgente. Questa condizione rende necessario l'uso di ottiche molto sofisticate, che, allo stato attuale dell'arte,

possono essere costruite con errori di forma inferiori a mezzo secondo d'arco e con rugosità di superficie media inferiore a 0.1 nm. Un così alto grado di accuratezza nella lavorazione delle superfici ottiche ha reso possibile, nelle macchine di terza generazione, il raggiungimento di altissimi valori di potere risolutivo di flusso e di collimazione non accessibili alle macchine della generazione precedente e, sicuramente, l'eccezionale brillantezza dell'XFEL, per essere sfruttata in pieno, richiederà la costruzione di ottiche molto più accurate di quanto lo siano quelle oggi disponibili.

Questi specchi, inoltre, dovranno essere raffreddati in modo che possano dissipare il calore provocato dall'altissima potenza media, dell'ordine delle centinaia di watt, che incide sulle superfici; un sistema ben collaudato presso le macchine di terza generazione prevede l'uso di specchi in silicio cristallino raffreddati all'azoto liquido. Il problema, invece, della potenza di picco, dell'ordine dei Gigawatt, rappresenta ancora una grande sfida tecnologica. Infatti, l'energia contenuta in un impulso di  $10^{32}$  fotoni e della durata di 100 femtosecondi non può essere convertita in calore prima che parte degli atomi che compongono lo specchio sia trasformata in plasma con conseguenti fenomeni di ablazione e di degrado delle superfici. La soluzione di questo problema o, quantomeno, la sua riduzione a livelli ragionevolmente accettabili, richiede uno studio a livello fondamentale dell'interazione di campi elettromagnetici di alta energia e alta intensità con la materia condensata che porterà sicuramente a soluzioni innovative nel campo delle ottiche per raggi X.

Oltre al problema della dissipazione della potenza, presente anche nelle macchine di terza generazione, per le nuove ottiche per l'X-FEL dovranno essere risolti anche il problema della conservazione della struttura temporale e della coerenza che sono le caratteristiche originali offerte dalla nuova sorgente. Per un monocromatore a cristallo, ciascuna riflessione dai piani cristallini produce un ritardo  $\lambda/c$  quando  $\lambda$  soddisfa la condizione di Bragg. Quindi, la scelta del cristallo e la scelta degli indici della riflessione sarà importante ai fini del controllo di questi effetti. In ogni caso, la possibilità di ottenere insieme altissima risoluzione energetica e altissima risoluzione temporale sarà limitata dal principio di indeterminazione ( $\Delta E \cdot \Delta t \geq h/2$ ).

### *Le linee di luce*

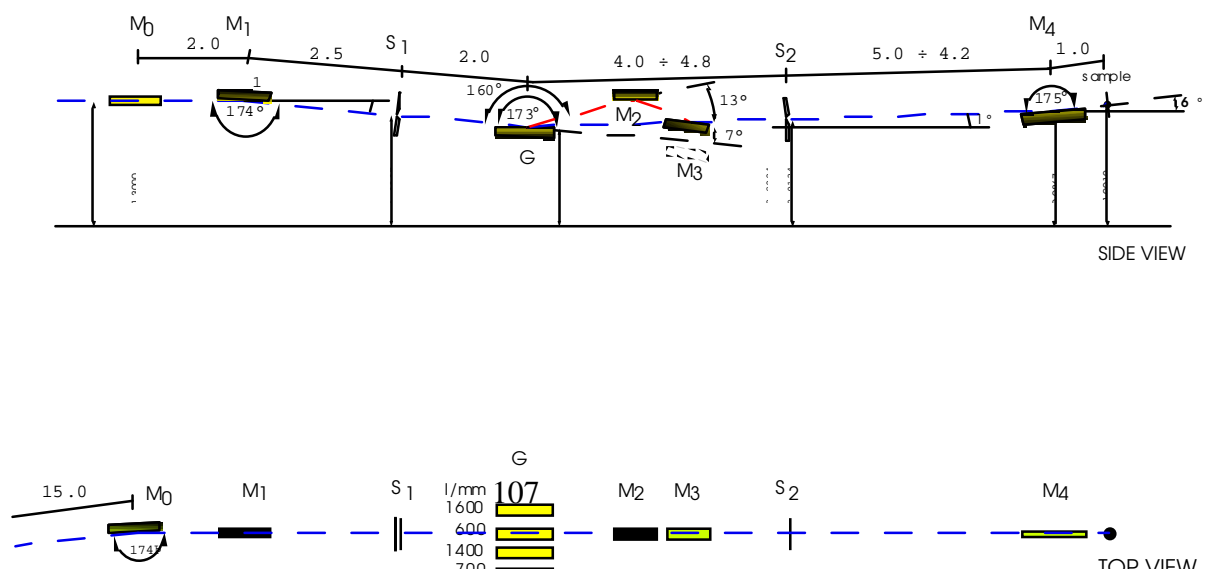
Gli ondulatori UM1, UM2, descritti nelle pagine seguenti, coprono complessivamente l'intervallo energetico compreso tra 90 eV e 4 keV, con una larghezza di banda  $\Delta E/E$  dello 0,5%. Molti esperimenti, soprattutto nella regione dei raggi X molli, richiedono poteri risolutivi superiori a  $10^4$ . Questo impone, anche per l'X-FEL, l'uso di tecniche di monocromatizzazione della luce che consentono di selezionare, dentro la larghezza di banda della sorgente, una finestra di energia molto più stretta. Nell'ultimo decennio, presso tutte le sorgenti di terza generazione, sono state sviluppate

molte soluzioni volte ad ottenere poteri risolutivi altissimi; questo ha comportato un progresso nelle tecniche di fabbricazione dei reticoli di diffrazione e delle ottiche di focalizzazione della luce. Anche le tecniche di simulazione (Ray-Tracing) hanno ricevuto un grande impulso soprattutto con l'integrazione di codici di calcolo a elementi finiti, tanto che, oggi, simulare le prestazioni di una linea di luce sottoposta a notevole carico termico è un'operazione quasi di routine. Altro discorso sarà tener conto, nei programmi di simulazione, del carico di picco e degli effetti di coerenza indotti dalla radiazione dell'X-FEL sugli elementi ottici delle linee di luce e tale problema si configura come una delle sfide scientifiche e tecnologiche che questo nuovissimo tipo di sorgente lancia alla comunità scientifica internazionale.

I monocromatori a reticolo maggiormente impiegati nelle macchine sorgenti di luce possono essere schematicamente raggruppati in due categorie: monocromatori a reticolo piano e monocromatori a reticolo sferico. Questi reticoli sono i più facili da costruire con le accuratezze e le precisioni comunemente richieste (slope-errors < 0,5" roughness < 0,1 nm RMS). Il tipo di reticolo impiegato e le specifiche sulle caratteristiche che la luce deve avere sul campione definiscono le soluzioni meccaniche per la selezione delle lunghezze d'onda. La soluzione in assoluto più semplice dal punto di vista meccanico, e per la quale, quindi, le specifiche di precisione sono meno stringenti, è rappresentata dal monocromatore a reticolo sferico ad angolo di deflessione fisso ( $\alpha + \beta = \text{cost.}$ ) il cui primo esemplare, lo "SGM DRAGON" è stato realizzato da F. Sette e T.C.Chen [1].

Presso la Facility ELETTRA è in funzione dal 1994 una linea di luce per fotoemissione ad alta risoluzione energetica (linea VUV Photoemission), realizzata dal CNR in collaborazione con Trieste, che impiega un onduttore e un monocromatore tipo DRAGON, modificato per estendere il campo di energia da 15 eV fino a 1200 eV [2]. L'esperienza maturata negli anni su questo strumento consente di affermare con sicurezza che lo stesso tipo di monocromatore potrà essere utilizzato anche su SPARX.

Lo schema della linea di Trieste [3] è riportato in fig.2.28



**Fig. 2.28 Schema ottico della linea di luce VUV presso ELETTRA: M0, specchio sferico di prefocalizzazione orizzontale (il fuoco è sulla posizione media della fenditura di uscita); M1, specchio sferico di focalizzazione verticale (il fuoco è sulla posizione della fenditura di ingresso); S1, fenditura di ingresso; G, sistema di 5 reticoli sferici; M2, M3, specchi piani per l'estensione del range energetico verso le basse energie; S2 fenditura di uscita; M4, specchio torico di postfocalizzazione della luce sul campione.**

Essa monta un'ottica di prefocalizzazione (M0, M1 nella figura) secondo uno schema di Kirkpatrick-Baetz in cui gli specchi cilindrici sono sostituiti da specchi sferici concavi.

Lo specchio M0 ha un raggio di 240 m, deflette la luce di  $6^\circ$  sul piano orizzontale ed ha il fuoco tangenziale sulla fenditura di uscita mentre il fuoco sagittale, a causa del grande raggio di curvatura, è molto più distante fornendo, così, un'ottima approssimazione di uno specchio cilindrico.

A 2 metri da M0 si trova il secondo specchio M1; anch'esso ha forma sferica, deflette di  $6^\circ$  la luce nel piano verticale e focalizza tangenzialmente nel piano verticale all'altezza della fenditura di ingresso S1 del monocromatore. M0 e M1 insieme costituiscono un sistema ottico disaccoppiato in cui i fuochi verticale ed orizzontale sono indipendenti; questo tipo di montaggio consente di allineare l'intero sistema nel piano orizzontale senza interferire con l'allineamento nel piano verticale e viceversa. Una simile flessibilità non è consentita in altre geometrie e permette tolleranze maggiori sulle dimensioni e sul posizionamento dei componenti dell'intera linea. M0 e M1 sono costruiti in carburo di silicio ricoperto con 25 nm di oro e sono raffreddati ad acqua sui lati.

La fenditura di ingresso S1 si trova a 2 m da M1 e a 2,5 m dal reticolo; essa è costituita da due lame in carburo di tungsteno, raffreddate ad acqua, che si muovono parallelamente e della stessa quantità rispetto al centro dell'apertura che si mantiene fisso. Tipicamente l'apertura è di  $10\div 20\ \mu\text{m}$  nella configurazione per le alte energie e di  $50\div 100\ \mu\text{m}$  nella configurazione per le basse energie. Questi valori della fenditura, in condizioni ottimali di funzionamento dell'anello e di allineamento della linea, lasciano passare rispettivamente il 50% e il 90% della radiazione in ingresso proveniente dagli specchi M0 e M1.

Un sistema di 5 reticoli sferici, intercambiabili copre l'intero range di energia; ogni reticolo focalizza le immagini monocromatiche della fenditura di ingresso sul piano della fenditura di uscita. La selezione delle lunghezze d'onda è ottenuta con una semplice rotazione del reticolo nel piano verticale. Come conseguenza di questa rotazione il fuoco verticale del reticolo si sposta e, quindi, per ottenere le prestazioni ottimali di risoluzione, la fenditura di uscita deve essere mossa per

inseguire il fuoco. Questa caratteristica non rappresenta un inconveniente per esperimenti che non richiedono piccole dimensioni del fuoco sul campione e quindi un'ottica di rifocalizzazione che mantenga costante il rapporto di demagnificazione. In ogni caso è possibile ridisegnare il monocromatore in modo che la fenditura di ingresso sia mobile e quella di uscita sia fissa. L'angolo di deflessione del monocromatore nel disegno originale è di  $7^\circ$  con una rotazione del reticolo di  $3,5^\circ$ . Questa geometria è particolarmente adatta per i raggi X molli ( $200 \div 1000$  eV) mentre, per l'ultravioletto da vuoto ( $10 \div 200$  eV), richiederebbe reticoli con un densità di righe molto bassa e, di conseguenza, poco efficienti. La coppia di specchi piani M2, M3 porta l'angolo di deviazione a  $20^\circ$  consentendo l'uso di reticoli adeguati per le basse energie, senza cambiare il percorso ottico finale. Questa soluzione ha permesso di ottenere agevolmente un potere risolutivo di 20000 a 60 eV.

A cinque metri dalla posizione mediana della fenditura di uscita, lo specchio M4 rifocalizza la radiazione sul campione che è posto un metro più avanti, nell'apparato sperimentale. Il rapporto di magnificazione 0,2 di questo specchio serve per ottenere uno spot luminoso ragionevolmente piccolo sul campione.

Gli specchi M2, M3, M4 e la fenditura di uscita, nella beamline VUV di ELETTRA non necessitano di raffreddamento mentre, nel caso di un DRAGON per XFEL, dovranno sicuramente essere raffreddati.

Un elemento importante della linea è il sistema di beam stopper raffreddati dell'ordine zero che, nella linea VUV, servono ad evitare che la riflessione speculare dal reticolo possa colpire le pareti interne e generare un fastidioso fondo di luce diffusa non monocromatica. Questo elemento diventa estremamente importante nel caso dell'XFEL perché, data l'enorme potenza in gioco, l'ordine zero, incidendo su una superficie non raffreddata, avrebbe effetti disastrosi.

### ***Sistema da vuoto***

È opportuno fare alcune considerazioni sul vuoto, primo perché ci sono dei motivi fisici che rendono necessario un ambiente privo di gas, secondo perché l'impianto di produzione del vuoto determina la maggior parte dei costi di realizzazione di una linea di luce.

Un sistema da vuoto si rende necessario perché la radiazione nel lontano ultravioletto e nei raggi X molli è rapidamente assorbita dagli atomi e dalle molecole di cui è costituita l'atmosfera. Inoltre, i processi fotochimici che avvengono sulle superfici ottiche porterebbero ad un rapido degrado le superfici di specchi e reticoli se la densità dei gas residui nella linea non venisse ridotta di almeno 13 ordini di grandezza rispetto ai valori naturali. Per le linee UV e "soft X rays" delle sorgenti di terza generazione è generalmente richiesta una pressione base  $P < 10^{-9}$  mbar e di solito si ottengono pressioni inferiori a questa di più di un ordine di grandezza. Per una sorgente del tipo SPARX si dovrà richiedere una pressione base che sia almeno nella scala  $10^{-11}$  mbar.

1. C. T. Chen and F. Sette, Rev. Sci. Instrum. **60**, 1616, (1989).
2. C. Quaresima, C. Ottaviani, M. Matteucci, C. Crotti, A. Antonini, M. Capozzi, S. Rinaldi, M. Luce, P. Perfetti, K. C. Prince, C. Astaldi, M. Zacchigna, L. Romanzin, A. Savoia ", Nuclear Instruments & Methods A **364**, 378, (1995).
3. K. C. Prince, C. Quaresima, A. Savoia, P. Perfetti: "*Photoemission beamline: "Conceptual design and technical specifications"* Sincrotrone Trieste report ST/S-R-90/7 March 1990.

### **Costi**

Nella Tab. 2.I sono riportati i costi (comprensivi di IVA) per 5 linee di luce.

**Tab. 2.I – Costi di 5 linee di luce (M€)**

	Costo comprensivo di IVA	contingenza
<b>Componenti</b>	6.85	
<b>Parti accessorie:</b>	1.18	
Camere sperimentali:	3.07	
<b>Totale</b>	11.10	2

### Studio e sviluppo dei supporti ottici per il trasporto del fascio della radiazione X-FEL

Il progetto di ricerca che si intende proporre riguarda fundamentalmente le parti ottiche necessarie al trasporto del fascio generato dal SASE. Lo studio che si intende effettuare è articolato in due attività principali: la prima attività è rivolta a supporto della progettazione e realizzazione delle ottiche, mentre la seconda riguarda il controllo in situ di queste durante il normale funzionamento. Tale attività sarà principalmente incentrata sull'uso delle tecniche fototermiche che, a nostro avviso, possono costituire un valido supporto in questa fase di realizzazione. Attraverso queste tecniche, è infatti possibile controllare una serie di parametri ottici, termici e strutturali quali spessori degli strati, gradi di adesione, uniformità, etc. Inoltre queste tecniche, essendo remote e prive di contatto, rendono possibile il controllo delle ottiche anche durante il regolare funzionamento della sorgente. Quindi un volta effettuate le analisi con sorgenti di radiazione comunemente disponibili in laboratorio, si può, ove possibile, usare direttamente il SESA come sorgente di segnale fototermico.

Le linee guida dell'attività di ricerca che si intende effettuare sono le seguenti:

- Valutazione della soglia di danneggiamento. Dato l'elevato valore della potenza di picco generata dalla sorgente, si rende necessario l'uso di componenti ottici in grado di resistere a tali

potenze. A questo proposito, la tecnica di deflessione fototermica è, da diversi anni, applicata con successo nella valutazione degli specchi per cavità laser.

- Valutazione dell'efficienza di dissipazione del calore. E' ben noto che una certa parte della radiazione incidente, anche se in piccola percentuale, è inevitabilmente convertita in calore. Visto le notevoli potenze di picco (GW) in gioco, ciò può produrre un aumento di temperatura del componente ottico. Essendo il segnale fototermico legato all'aumento di temperatura, è possibile quindi monitorare l'efficacia di dissipazione del calore delle ottiche e dei supporti su cui queste sono montate. Inoltre, seguendo la stessa linea di principio, è possibile osservare eventuali danneggiamenti dovuti a cambiamenti strutturali fotoindotti o ad adsorbimento di gas che sono in generale responsabili per un aumento del coefficiente di assorbimento e, di conseguenza, della temperatura.

- Mappatura delle superfici. Le tecniche fototermiche prevedono l'uso di fasci laser per la generazione e, in alcuni casi, per la rivelazione del segnale. Ciò consente di raggiungere una elevata risoluzione spaziale che può essere utilizzata per ottenere informazioni locali sul campione in esame. Questa potenzialità può essere sfruttata per controllare lo stato delle superfici che si intendono utilizzare ovvero per controllare la distribuzione spaziale di eventuali danneggiamenti.

## **Elenco dei ricercatori che hanno contribuito al caso scientifico:**

Alagia M.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Alagna L.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Amore Bonapasta A.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Avaldi L.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Baldeschi W.	I.P.C.F.-C.N.R. – Italia
Balerna A.	L.N.F.-I.N.F.N. – Italia
Barbini A.	I.P.C.F.-C.N.R. – Italia
Battistutta R.	Università di Padova – Italia
Bellitto C.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Beltrame F.	Università di Genova – Italia
Benvenuti F.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Bertolotti M.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Bollanti S.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Bolognesi P.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Bonfigli F.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Botti S.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Brunetti A.	Università di Sassari – Italia
Camilloni R.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Caminiti R.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Capitelli M.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Carbone C.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Celiberto R.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Cendron L.	Università di Padova – Italia
Cerrina F.	Università del Wisconsin-Madison, USA
Cilloco F.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Colonna G.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Colonna S.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Coluzza C.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Congiu Castellano A.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Contini G.	I.M.P.-C.N.R. – Italia
Cricenti A.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Croce F.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Crotti C.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
D’Acapito F.	I.N.F.M. – Francia
De Caro L.	I.C.-C.N.R. – Italia
De Giacomo A.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
De Moliner E.	Università di Padova – Italia
De Padova I.P.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
De Pascale O.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Desideri S.	Università di Roma “Tor Vergata” – Italia
Diaspro A.	Università di Genova – Italia



Doria A.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Esposito F.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Fainelli E.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Fato M.	Università di Genova – Italia
Fernandez – Alonso F.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Ferrari L.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Fiorani D.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Flamini A.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Flora F.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Galimberti M.	I.P.C.F.-C.N.R. – Italia
Gallerano G.P.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Generosi A.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Giacovazzo C.	I.C.-C.N.R. – Italia
Giannessi L.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Giovenale E.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Girasole M.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Giulietti A.	I.P.C.F.-C.N.R. – Italia
Giulietti D.	Università di Pisa – Italia
Gizzi L.	I.P.C.F.-C.N.R. – Italia
Golosio B.	Università di Sassari – Italia
Gorse C.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Grimaldi S.	I.S.N.M.M.-C.N.R. – Italia
Hajdou J.	Università di Uppsala - Svezia
Imperatori P.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Jakobsen C.	Università di New York - USA
Labate L.	I.P.C.F.-C.N.R. – Italia
Lagomarsino S.	I.F.N.-C.N.R. – Italia
Larciprete R.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Laricchiuta A.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Liakhov G.	Università di Roma "La Sapienza" – Italia
Lisi A.	I.S.N.M.M.-C.N.R. – Italia
Longo S.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Marcelli A.	L.N.F.-I.N.F.N. – Italia
Margaritondo G.	E.P.F.L. – Svizzera
Matassa R.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Mobilio S.	Università di Roma Tre – Italia
Montereali R. M.	E.N.E.A. Frascati – Italia
Morante S.	Università di Roma “Tor Vergata” – Italia
Morone A.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Mussi V.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Nichelatti E.	ENEA Casaccia - Italia
Orlando S.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Osellame R.	I.F.N.-C.N.R. – Italia

Ottaviani C.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Paci B.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Panero S.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Paoloni S.	Università di Roma "La Sapienza" – Italia
Paparazzo E.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Papinutto E.	Università di Padova – Italia
Perfetti L.	E.P.F.L. – Svizzera
Perfetti P.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Piccirillo S.	Università di Roma “Tor Vergata” – Italia
Pietanza D.	I.M.I.P.-C.N.R. – Italia
Pifferi A.	I.C.-C.N.R. – Italia
Prosperi T.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Quaresima C.	I.S.M.-C.N.R. – Italia
Reale P.	Università di Roma “La Sapienza” – Italia
Righini M.	I.S.M.-C.N.R. - Italia
Ronci F.	I.S.M -C.N.R. - Italia
Rosato N.	Università di Roma "Tor Vergata" - Italia
Rossi A.	I.P.C.F.-C.N.R. - Italia
Rossi Albertini V.	I.S.M.-C.N.R. - Italia
Rossi G.	I.S.M.-C.N.R. - Italia
Rossi M.	Università di Roma "La Sapienza" - Italia
Sadun C.	Università di Roma "La Sapienza" - Italia
Satolli D.	Università di Roma "La Sapienza" - Italia
Scrosati B.	Università di Roma "La Sapienza" - Italia
Selci S.	I.S.M.-C.N.R. - Italia
Sessa V.	Università di Roma "Tor Vergata" - Italia
Siliqi D.	Università di Tirana - Albania
Somma F.	Università di Roma Tre - Italia
Spagna R.	I.C.-C.N.R. - Italia
Svelto O.	I.F.N.-C.N.R. - Italia
Terranova M.L.	Università di Roma "Tor Vergata" - Italia
Tomassini P.	I.P.C.F.-C.N.R. - Italia
Turchini S.	I.S.M.-C.N.R. - Italia
Virgili T.	I.F.N.-C.N.R. - Italia
Zanotti G.	Università di Padova - Italia
Zema N.	I.S.M.-C.N.R. - Italia
Zontone F.	E.S.R.F. - Francia

### **3. IMPATTO DELLA SORGENTE SPARX SUL PANORAMA NAZIONALE E INTERNAZIONALE**

Le condizioni per la realizzazione della sorgente SPARX sono estremamente favorevoli in Italia. Infatti:

- Il nuovo laser consentirà di aumentare di almeno dieci ordini di grandezza la brillantezza di picco rispetto alle migliori sorgenti attuali di raggi X. Per mettere in prospettiva questo straordinario balzo di qualità, occorre notare che sono stati necessari più di settant'anni, dopo la scoperta dei raggi X, per aumentare la brillantezza di meno di un ordine di grandezza; negli ultimi quarant'anni, questa è aumentata complessivamente di quattordici ordini di grandezza. Il nuovo laser produrrà un simile ulteriore miglioramento entro i prossimi 5-6 anni.
- Per le sue caratteristiche senza precedenti, la sua realizzazione in territorio italiano porterebbe il Paese ad una posizione di assoluta avanguardia sul piano mondiale. A parte le considerazioni di prestigio scientifico e le importantissime applicazioni tecnologiche, occorre sottolineare che l'industria italiana avrà la possibilità di acquisire tecnologie inedite nella produzione dei raggi X, vendibili in un mercato ancora non sfruttato.
- La natura pulsata della nuova sorgente la rende complementare piuttosto che sostitutiva rispetto alle sorgenti di luce di sincrotrone già esistenti, come ESRF (European Synchrotron Radiation Facility a Grenoble) ed Elettra (Trieste). L'Italia potrebbe essere in tal modo uno dei pochi paesi dotato di tutti i tipi più avanzati di sorgenti di raggi X, con ovvi vantaggi per la propria ricerca e per la propria tecnologia industriale.
- Lo schema di base del nuovo laser è stato concepito in Italia con il contributo di numerosi scienziati, internazionalmente considerati tra i migliori esperti del mondo di sorgenti laser a raggi X. Inoltre, alcune delle tecnologie critiche per lo sviluppo di una sorgente SASE sono state elaborate dall'industria italiana Zanon di Schio.
- Negli anni recenti, l'Italia si è posta fra i paesi più avanzati del mondo per quanto concerne la scienza e la tecnologia legate ai raggi X. I punti focali di tale azione sono state la vigorosa partecipazione al laboratorio europeo ESRF, e la messa in opera della sorgente ultrabrillante Elettra. Queste imprese hanno permesso all'Italia di accumulare una notevolissima massa di conoscenze e tecnologie in questo campo.
- Per gli stessi motivi, i ricercatori italiani sono in una posizione d'avanguardia nelle applicazioni dei raggi X, in campi e discipline differenti quali la scienza dei materiali, la chimica delle superfici, la spettroscopia avanzata, la radiologia a contrasto di fase, la cristallografia delle proteine e la microfabbricazione.

- Il bacino di utenza è formato dalla comunità che svolge attività scientifica nelle diverse facilities internazionali, dalla comunità che svolge attività scientifica con i laser e dalla comunità biologica e medica; un numero sicuramente conservativo di ricercatori italiani possibili utenti è dell'ordine di 500 unità.
- In campo internazionale i progetti più avanzati di laser nei raggi X basati sull'effetto SASE sono il progetto TTF II del laboratorio DESY di Amburgo, incentrato nei raggi X molli e primo passo verso il laser nei raggi X duri del progetto TESLA, ed il progetto LCLS di Stanford (U.S.A.) che opererà nella regione dell'Ångstrom. Mentre il progetto TTF II è finanziato e la facility sarà operativa nel 2004-2005, il progetto TESLA è approvato ma non ancora finanziato. Il progetto LCLS è approvato e sarà finanziato a partire dal 2004.
- Il progetto SPARX si inserisce molto bene in tale quadro sia per la complementareità dell'intervallo spettrale, fortemente incentrato nella regione dei raggi X molli, che per le notevoli sinergie già esistenti tra le componenti scientifiche di tali progetti. Soprattutto le collaborazioni già esistenti con il laboratorio di Amburgo permetteranno un notevole scambio di know-how e favoriranno la realizzazione di strutture sperimentali complementari.
- È facile prevedere che da tale sinergia il progetto SPARX possa aumentare il bacino d'utenza in modo sostanziale e porsi come punto nodale nella ricerca internazionale basata su sorgenti di luce di sincrotrone di quarta generazione.
- Infine, occorre sottolineare che l'area romana, ed in particolare il campus universitario di Tor Vergata, è un territorio ideale per questo insediamento. Le condizioni ottimali sono create da parecchi elementi, quali: (1) l'alta concentrazione di utenti scientifici e tecnologici di raggi X, frutto dei programmi del CNR e dell'INFN a Frascati in tale campo; (2) le competenze e le infrastrutture tecnologiche fornite dall'Area di ricerca di Tor Vergata del CNR, dai laboratori nazionali di Frascati (INFN e ENEA), che sono fra i migliori del mondo per quanto concerne la tecnologia degli acceleratori - nonché depositari di vaste competenze sui laser di tipo "a elettroni liberi" della quale fanno parte i sistemi SASE; (3) la complementarità geografica rispetto a Trieste e Grenoble, nonché la facilità d'accesso per ricercatori e industrie da tutto il territorio nazionale.

## **4. SOGGETTI PARTECIPANTI ALL'INIZIATIVA E RELATIVO RUOLO**

### **4.1 SOGGETTI PARTECIPANTI**

I soggetti partecipanti all'iniziativa sono:

- Consiglio Nazionale delle Ricerche (CNR)
- Ente per le Nuove Tecnologie, l'Energia e l'Ambiente (ENEA)
- Istituto Nazionale di Fisica Nucleare (INFN)
- Università di Roma "Tor Vergata"

Nel seguito vengono riportate le motivazioni di eccellenza scientifica e il grado di collegamento con reti di ricerca Nazionali e Internazionali dei soggetti proponenti

#### **CNR**

Il progetto Sincrotroni del CNR coordina l'attività di numerosi Istituti impegnati nell'attività di luce di sincrotrone (LdS) da molti anni: l'Istituto di Struttura della Materia (ISM, Tor Vergata, Montelibretti e Trieste), l'Istituto di Fotonica e Nanostrutture (IFN, Roma, Milano e Trento), l'Istituto di Metodologie Inorganiche e dei Plasmi (IMIP, Montelibretti, Bari e Potenza), l'Istituto di Cristallografia (IC, Montelibretti e Bari).

L'ISM ha una lunga esperienza nel campo della "LdS", ed è stato l'istituto guida, in collaborazione con l'INFN, nella trasformazione dell'anello di accumulazione ADONE come facility di luce di sincrotrone. Attualmente, dopo la chiusura di ADONE, l'ISM ha spostato la sua attività realizzativa e scientifica ad ELETTRA (Trieste). Ad ELETTRA L'ISM, in collaborazione con l'ex Istituto ICMAT, ha costruito due linee di LdS, la linea VUV per spettroscopia fotoelettronica e la linea POLAR per studi spettroscopici con radiazione polarizzata circolarmente. Tali linee, gestite dal personale CNR, sono lo stato dell'arte nel campo della LdS e, già in funzione da tempo, stanno fornendo risultati di grande valore scientifico nel campo della fisica delle superfici, interfacce e materiali magnetici.

L'Istituto IC è anche impegnato a Trieste ed è compartecipe al 50 % della realizzazione e gestione della linea di diffrazione X, fortemente impegnata nel campo della diffrazione da macromolecole biologiche.

L'IMIP ha anche una notevole compartecipazione nella realizzazione e gestione della linea per studi di sistemi in fase gassosa. In tale campo l'IMIP ha una validissima attività scientifica

finalizzata allo studio dei processi elementari dell'interazione radiazione-materia e della dinamica molecolare, nonché dei meccanismi che determinano la reattività chimica di specie eccitate e le loro proprietà chimico-fisiche.

L'Istituto IFN è compartecipe al 50 % della realizzazione e gestione della linea LILIT, per microlitografia. Oltre a tale esperienza l'ex Istituto di Elettronica dello Stato Solido è da anni impegnato nello sviluppo di metodologie innovative nel campo dei raggi X. Recentemente si è occupato di microscopia e microdiffrazione a raggi X mettendo a punto ottiche quali le guide d'onda e le lenti di Fresnel ("zone plates") e ottenendo in questo campo risultati di rilievo.

L'ex Centro di Elettronica Quantistica (CEQSE-CNR, Milano), oggi confluito nel IFN, vanta una consolidata esperienza nello sviluppo di sorgenti laser, ampiamente riconosciuta sia a livello nazionale che internazionale. In particolare a partire dagli anni settanta, il CEQSE è impegnato nella ricerca di tecniche e metodologie innovative per la generazione d'impulsi ultrabrevi. Nell'ambito dei coloranti organici, il CEQSE ha sviluppato laser a pompaggio sincrono in grado di generare impulsi, della durata di 40 fs, ultrastabili mediante l'uso d'opportuni risonatori ottici. Con l'introduzione del titaniozaffiro, il CEQSE ha condotto ricerche sull'ottimizzazione della tecnica di Kerr-lens modelocking, utilizzata negli oscillatori laser al fs di nuova generazione. Recentemente, il CEQSE ha conseguito notevoli risultati nello sviluppo di tecniche per la compressione ottica degli impulsi a fs di elevata energia. L'invenzione della tecnica della fibra cava ha consentito di generare impulsi della durata di 4,5 fs con energia di qualche centinaio di microjoule, che costituisce attualmente il record di durata in campo internazionale.

## **Pubblicazioni**

- C. Quaresima et al.: "First Results from the High Energy Resolution Photoemission Beamline at ELETTRA"; Nucl. Instr. and Meth. **A 364**, 374 (1995).
- R. Camilloni et al. : "Interference Effects in the Auger Decay of the Resonantly Excited  $2p_{3/2}^{-1}3d$  State of Argon", Phys. Rev. Lett. **77**, 2646 (1996).
- P. De Padova et al.: "Identification of the Si 2p Surface Core Level Shifts on the Sb/Si(001)(2x1) Interface", Phys. Rev Lett. **81**, 2320 (1998).
- S. Di Fonzo et al., *Nature*, **403**, 638, (2000).
- E. Di Fabrizio et al., *Nature*, **401**, 895 (1999).
- G.Cerullo et al. : "Resonators for Kerr-lens mode-locked femtosecond Ti:sapphire lasers", Opt. Lett. **19**, 807 (1994).
- M.Nisoli, et al. "A novel high energy pulse compression system: generation of multigigawatt sub-5-fs pulses", Appl. Phys. **B 65**, 189 (1997).

## ENEA

L'ENEA ha, nel campo dei Laser ad Elettroni Liberi, una vasta esperienza. L'Ente è stato coinvolto nello studio, nel progetto e nella realizzazione di ondulatori e di laser ad elettroni liberi da quasi venticinque anni e pertanto le relative competenze, al pari di altre quali il progetto e lo sviluppo di acceleratori, possono essere considerate un suo patrimonio consolidato.

In particolare la Unità Tecnico Scientifica *Tecnologie Fisiche Avanzate* (FIS), attraverso il Gruppo di *Fisica teorica e Matematica* (FIS-MAT) e la Sezione *Laser ed Acceleratori* (FIS-ACC) è attiva nello sviluppo di competenze e nella realizzazione di dispositivi di tipo FEL che comprendono sistemi operanti dalle microonde fino all'UV, con acceleratori che vanno dai microtroni e i linac fino agli anelli di accumulazione. La competenza nel settore è vasta e ben riconosciuta come testimoniato dalla ampiezza delle collaborazioni internazionali e dalle numerose pubblicazioni di articoli su riviste specializzate e di libri relativi all'argomento.

Tra i contributi più significativi si ricordano

- a) sviluppo di modelli teorici per la corretta interpretazione dei dati sperimentali e il progetto di nuovi dispositivi FEL,
- b) realizzazione del primo FEL operante nell'infrarosso con microtrone,
- c) trasferimento di know-how e costruzione di ondulatori insieme all'ANSALDO,
- d) realizzazione del primo FEL ad effetto Cerenkov,
- e) realizzazione di FEL operanti in guida d'onda nella regione sub millimetrica,
- f) sviluppo di progetti per l'utilizzo di FEL per riscaldamento addizionale di plasmi fusionistici,
- g) sviluppo di progetti per FEL operanti al di sotto dei 100nm per programmi di fusione inerziale con ioni pesanti,
- h) partecipazione alla messa in operazione di un laser ad elettroni liberi in anello di accumulazione presso l'università di Dortmund
- i) collaborazione tramite network europeo per l'analisi dei dati sperimentali del FEL operante su SUPER ACO, in tale contesto sono stati chiariti i meccanismi di interazione FEL instabilità di macchina
- j) collaborazione alla realizzazione, nel quadro di un network europeo, di un laser ad elettroni liberi su ELETTRA a 189nm (da notare che tale lunghezza d'onda è a oggi la più breve ottenuta con un FEL operante con anello di accumulazione).

k) Collaborazione con Argonne (USA) e partecipazione al gruppo di progetto EXOTICA per lo studio e la realizzazione di FEL operanti in regime di alto guadagno e con generazione coerente di armoniche.

l) Sviluppo di un codice di calcolo tridimensionale dedicato alla simulazione della dinamica di fasci intensi di elettroni in strutture magnetiche basate su principi primi. Il codice, denominato TREDI, permette di simulare la dinamica del fascio di elettroni dall'estrazione sino all'ondulatore magnetico, ovvero permette di trattare i problemi connessi sia con i campi di carica spaziale che dominano la dinamica a bassa energia, che gli effetti di instabilità quali l'emissione di radiazione coerente (CSR) nel compressore e negli elementi magnetici che costituiscono il canale di trasporto. Il codice è correntemente utilizzato in ambito internazionale (UCLA – BNL).

m) Studio del problema della fotoemissione da catodi metallici e ceramici (ferroelettrici), ed acquisizione di competenze nella produzione e trasporto di fasci di elettroni a bassa emittanza.

### **Publicazioni**

G. Dattoli, A. Renieri and A. Torre “ Lectures on Free Electron Laser Theory and Related Topics” World Scientific, Singapore (1990)

R. Barbini, F. Ciocci, G. Dattoli, A. Dipace, L. Giannessi, G. Maino, C. Mari, A. Marino, C. Ronsivalle, E. Sabia, A. Torre: 80 nm FEL Design in an Oscillator Amplifier Configuration, Proceedings of the Workshop Prospects for a 1 A Free-Electron Laser, Sag Harbor, New York April 22-27, 1990; BNL 52273 UC-414 High Energy Physics DOE/OST1-4500-R75), p.57-62 (1990)

F. Ciocci, G. Dattoli, A. De Angelis , B. Faatz, F. Garosi, L. Giannessi, P. L. Ottaviani, A. Torre: Design Considerations on a High-Power VUV FEL, IEEE Journal of Quantum Electronics 31, p.1242-1252 (1995)

F. Ciocci, G. Dattoli, A. Torre and A. Renieri “ Insertion devices for synchrotron radiation and free electron lasers” World Scientific, Singapore (2000).

G. Dattoli, A. Renieri and G. K. Voykov “ Storage Ring Free Electron Laser Amplifiers and the Microwave Instability” Phys. Rev. E55, 2056 (1997).

Walker RP, Clarke JA, Couprie ME, Dattoli G, Eriksson M, Garzella D, Giannessi L, Marsi M, Nahon L, Nolle D, Nutarelli D, Poole MW, Quick H, Renault E, Roux R, Trovò M, Werin S, Wille K: First lasing and initial performance of the European UV/VUV storage ring FEL at ELETTRA, Nuclear Instruments & Methods; A 475, p.20-27 (2001)

M. Trovò, J. A. Clarke, M. E. Couprie, G. Dattoli, D. Garzella, A. Gatto, L. Giannessi et. al.: Operation of the European storage ring FEL at ELETTRA down to 190 nm, Nuclear Instruments and Methods; A, p. (to be published (accepted))



G. Dattoli, L. Mezi, P.L. Ottaviani, A. Renieri and M. Vaccari “ Storage-Ring FEL amplifier and Electron Beam Longitudinal Mode Camping Times” Phys. Rev. **E57**, 7153 (1998).

G. Dattoli and P. L. Ottaviani “ A Novel Scheme for the Generation of X-Ray Free Electron Lasers” J. Appl. Phys. **86**, 5331 (1999).

Doria, G.P. Gallerano, E. Giovenale, S. Letardi, G. Messina, C. Ronsivalle - Enhancement of coherent emission by energy-phase correlation in a bunched electron beam, Phys. Rev. Lett. **80**, 2841-2844 (1998)

Doria, G.P. Gallerano, S. Letardi, G. Messina, C. Ronsivalle, A. Vignati - Longitudinal phase space manipulation: a device to enhance the coherent emission from an RF modulated electron beam E. Giovenale, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **A437** 128-133 (1999)

Gallerano, A. Doria, E. Giovenale, A. Renieri - Compact Free Electron Lasers: From Cerenkov to Waveguide FELs, Infrared Phys. and Tech. **40**, 161-174 (1999)

S. G. Biedron, G. Dattoli, H.P. Freund, Z. Huang, S. V. Milton, H.D. Nuhn, P.L. Ottaviani and A. Renieri – High Gain Free Electron Laser and Harmonic Generation. 19<sup>th</sup> ICFA “Advanced Beam Dynamics Workshop on Future Light Sources: Physics of and Science with the X-Ray Free Electron Laser”, Arcidosso, Italy, Sep. 10-15 2000

Walker RP, Clarke JA, Couprie ME, Dattoli G, Eriksson M, Garzella D, Giannessi L, Marsi M, Nahon L, Nolle D, Nutarelli D, Poole MW, Quick H, Renault E, Roux R, Trovò M, Werin S, Wille K: First lasing and initial performance of the European UV/VUV storage ring FEL at ELETTRA, Nuclear Instruments & Methods; A 475, p.20-27 (2001)

M. Trovò, J. A. Clarke, M. E. Couprie, G. Dattoli, D. Garzella, A. Gatto, L. Giannessi et. al.: Operation of the European storage ring FEL at ELETTRA down to 190 nm, Nuclear Instruments and Methods; (to be published (accepted))

## INFN

L'istituto Nazionale di Fisica Nucleare (INFN) è stato pioniere in Italia nello sviluppo di macchine acceleratrici, dedicate alla fisica delle alte energie e alle sorgenti di radiazione di sincrotrone. Presso i Laboratori Nazionali e presso le Sezioni dell'Istituto esistono tutte le competenze teoriche e sperimentali necessarie per la progettazione e la costruzione di un acceleratore dedicato alla generazione di radiazione coerente tipo SASE.

In particolare presso i Laboratori Nazionali di Frascati (LNF), sono stati costruiti acceleratori di avanguardia sin dagli anni '60, come ADA primo anello di collisione di fasci elettroni-positroni, ADONE, anello di collisione all'energia di 1.5 GeV, utilizzato negli anni '80 anche come sorgente di radiazione di sincrotrone, fino a DAΦNE ('97), anello di ultima

generazione per la collisione di fasci ad elevata luminosità. Su ADONE fu installato un magnete wiggler per la produzione di raggi X ed un onduttore per la realizzazione di un esperimento FEL (LELA). Su DAΦNE, principalmente usata come anello  $e^+e^-$  per fisica delle particelle elementari, sono state anche realizzate due linee di luce di sincrotrone, dal magnete curvante e da un wiggler, che producono radiazione nella regione dell'infrarosso e dei raggi X-soft. Il complesso di acceleratori esistente attualmente presso i LNF è costituito da un Linac da 800 MeV, da un accumulatore di elettroni e positroni da 510 MeV e da due anelli intersecanti a 510 MeV.

La Divisione Macchine dei LNF ha inoltre contribuito, nel decennio 1980-1990, al disegno delle due facilities ESRF ed Elettra.

Nell'ambito del progetto TESLA per un collisore lineare per elettroni e positroni, con integrato un laboratorio per raggi X, l'INFN (LNF) ha collaborato con i Laboratori di DESY (Germania) al disegno degli anelli di smorzamento per il Technical Design Report.

L'INFN collabora attivamente con i Laboratori di DESY al progetto TESLA-TTF, dove recentemente è stata osservata la radiazione coerente tipo SASE alla lunghezza d'onda di 109 nm. I ricercatori dell'INFN hanno contribuito alla realizzazione di fotocatodi ad elevata intensità (INFN-Milano), alla realizzazione dei criomoduli per l'alloggiamento delle cavità superconduttive (INFN-Milano), alla realizzazione di cavità superconduttive a multicella (INFN-Laboratori Nazionali di Legnaro), alla realizzazione della diagnostica per il fascio (INFN-LNF) con tecniche innovative quale l'OTR (Optical Transition Radiation). Inoltre, lo studio teorico delle tecniche di compensazione dell'emittanza da parte di ricercatori dell'istituto (INFN-LNF, INFN-Milano) ha portato all'elaborazione di nuovi schemi di fotoiniettori ad elevata brillantezza che sono stati adottati in tutti i progetti di FEL-SASE proposti in Europa e negli USA. In questo ambito esiste inoltre una collaborazione di ricercatori dell'INFN, afferenti a questo gruppo proponente, con il progetto LCLS di SLAC.

Infine, i LNF dell'INFN metteranno a disposizione un edificio di circa 450 m<sup>2</sup>, attrezzato con gli impianti necessari, per la costruzione del fotoiniettore ad elevata brillantezza. Su tale attività saranno attivate tutte le competenze esistenti nel laboratorio: vuoto, magneti, radiofrequenza, diagnostica e controlli, elettronica, fotocatodi e laser, fisica dei fasci di particelle.

## **Pubblicazioni**

R. Barbini et al., "The Adone wiggler facility", La Rivista del Nuovo Cimento Vol. 4 serie 3 n. 8 (1981).

R. Barbini et al., "Preliminary results of the Adone storage ring FEL experiment LELA" -

Journal de Physique, Colloque C1, supplement au n. 2, p. 1 (1983)

M.E. Biagini et al., "Gain of the LELA free electron laser and characteristics of the optical cavity" - Nuclear Instruments and Methods Vol. A237, p. 273 (1984)

European Synchrotron Radiation Facility - "Report of the ESRP" - Presented by B. Buras and S. Tazzari (European Synchrotron Radiation Project), Geneva (1984)

Adone Group, "Design study for the Trieste synchrotron light source", (S. Tazzari Scientific Editor), Nota Interna LNF 87/6(R) (1987)

N. Cavallo et al., "Final Report on the LELA experiment", Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A, Vol. A272, no. 1-2, p. 64-7 (1988)

P. Amadei et al., "Proposal for a  $\Phi$ -factory", Nota Interna LNF 90/031(R) (1990)

DAΦNE Project Team, "DAΦNE: the Frascati  $\Phi$ -Factory", Proc. of the 1991 Particle Accelerator Conference, San Francisco (USA), Maggio 1991, IEEE Transaction, USA (1991)

C. Biscari and DAΦNE Commissioning Team, "DAΦNE Commissioning", Proc. of the European Particle Accelerator Conference, Stockholm (Sweden), 22-26/6/1998 (1998)

S. Guiducci and DAΦNE Commissioning Team, "Status Report on DAΦNE", Proc. of PAC2001, 18-22 June 2001 Chicago, USA (2001)

C. Sanelli et al., "Technical layout of the TESLA Damping Ring", LNF-01/003 (IR), 2001

L. Serafini and J.B. Rosenzweig, "Envelope analysis of intense relativistic quasilaminar beams in rf photoinjectors: a theory of emittance compensation", Phys. Rev. E55 (1997) 7565

L. Serafini, "Overview on production and dynamics of high brightness beams", AIP CP 395 (1997) 47

J.B. Rosenzweig and L. Serafini, "Transverse particle motion in radio-frequency linear accelerators", Phys. Rev. E49 (1994) 1599

M. Ferrario et al., "Multi-bunch energy spread induced by beam loading in a standing wave structure", Part. Acc. (1996) 1

L. Serafini and M. Ferrario, "Velocity bunching in photoinjectors", Proc. of 18<sup>th</sup> ICFA Beam Dynamics Workshop on "Physics of and Science with X-ray FEL's", Arcidosso, Settembre 2000

L. Serafini, "Computational modeling of high brightness electron beam physics", in "The Physics of High Brightness Beams", World Sci., Singapore 2000, Editors L. Serafini and J.B. Rosenzweig

M. Ferrario et al., "HOMDYN study for the LCLS rf photoinjector", in "The Physics of High Brightness Beams", World Sci., Singapore 2000, Editors L. Serafini and J.B. Rosenzweig

J. Arthur et al., "Linac Coherent Light Source (LCLS) Design Study Report", SLAC-R-521, Apr. 1998

L.Palumbo et al., “Wake-fields in circular pipe with periodical corrugation”, Proc. of 18<sup>th</sup> ICFA Beam Dynamics Workshop on “Physics of and Science with X-ray FEL’s”, Arcidosso, Settembre 2000

L.Palumbo et al., “Effects of statistical roughness in wave-guide propagation”, Proc. of 18<sup>th</sup> ICFA Beam Dynamics Workshop on “Physics of and Science with X-ray FEL’s”, Arcidosso, Settembre 2000

M.Ferrario et al., “Adiabatic Plasma Buncher”, IEEE Trans. on Plasma Sci. 28 (2000) 3423

J. Andruszkow et al., “First Observation of Self-Amplified Spontaneous Emission in a Free-Electron Laser at 109 nm Wavelength”, Phys. Rev. Lett.

M.Ferrario et al., “Conceptual design of the X-FEL photoinjector”, TESLA-FEL 01-03, DESY rep.

M.Castellano et al., “Spatial resolution of the optical system for the beam profile measurements at TTF”, TESLA 01-24, DESY rep.

M.Castellano et al., “Effects of diffraction and target finite size on coherent transition radiation spectra in bunch length measurements”, NIM-A435 (1999) 297

H.Edwards et al., “Measurements of the transverse emittance in the TTF injector”, NIM A-445 (2000) 233

### **UNIVERSITA' DI ROMA "TOR VERGATA"**

Le attività di ricerca del Dipartimento di Fisica comprendono da molti anni lo studio e la realizzazione di acceleratori avanzati di particelle. In particolare il gruppo ARES, costituito da personale universitario, personale INFN e studenti di Dottorato ha attivamente partecipato al progetto e alla realizzazione di sorgenti di luce di sincrotrone (ELETTRA) e dell'acceleratore TTF di Amburgo ed alla sperimentazione su di essi.

Su TTF la collaborazione internazionale TESLA/TTF, di cui il gruppo fa parte sin dall'inizio, ha recentemente messo in funzione un Laser a Elettroni Liberi (LEL) operante nel regime di autoamplificazione che, ha ottenuto il record mondiale di corta lunghezza d'onda [80 nm]. In particolare ha sviluppato competenze specifiche oltre che sulla dinamica dei fasci di particelle in acceleratori lineari, sulla realizzazione di cavità acceleranti superconduttive e su sistemi di controllo e diagnostica degli stessi. (L. Catani, A. Cianchi, C. Schaerf)

## **4.2 RUOLO DEI SOGGETTI PARTECIPANTI ALL'INIZIATIVA**

### **CNR**

Il CNR si propone di intervenire su due punti del progetto:

- Approfondire il caso scientifico ed organizzare gruppi di lavoro, coinvolgendo la comunità scientifica nazionale e internazionale, al fine di individuare le tematiche scientifiche prioritarie da perseguire, le linee di luce da costruire e gli esperimenti da realizzare. Verranno curati particolarmente i rapporti scientifici con i soggetti già coinvolti nella realizzazione di sorgenti simili, come TESLA del laboratorio Desy di Amburgo e LCLS di Stanford.
- Coordinare la progettazione, realizzazione e gestione delle linee di luce e delle camere sperimentali, con il contributo dei suoi Istituti e delle altre Istituzioni scientifiche interessate. Il CNR si propone anche di organizzare e gestire i laboratori di ricerca e di supporto.

### **ENEA**

Il contributo dell'ENEA si focalizza sulla progettazione, realizzazione e messa a punto del sistema FEL SASE, in particolare:

- analisi e modellizzazione del processo,
- progettazione e costruzione degli ondulatori e relativi sistemi diagnostici,
- progettazione e realizzazione dei canali di trasporto per elettroni e fotoni e relative diagnostiche

Il contributo dell'ENEA si estenderà, in collaborazione con INFN, anche allo studio e modellistica relativa alla generazione e manipolazione di fasci di elettroni di elevata brillantezza e monocromaticità.

Il contributo si estende poi anche alla proposta di attività di ricerca, in particolare nei settori della fisica, della chimica e delle scienze biologiche.

### **INFN**

Il contributo dell'INFN si focalizza sulla progettazione, realizzazione e messa a punto del sistema Acceleratore Lineare (Linac), in particolare:

- analisi e modellizzazione della dinamica del fascio di elettroni,
- progettazione e costruzione dell'iniettore, sistema accelerante, elementi di ottica e relative diagnostiche,
- progettazione e realizzazione dei canali di trasporto del fascio di elettroni dall'uscita del Linac all'ingresso nell'ondulatore

Il contributo dell'INFN si estenderà, in collaborazione con l'ENEA, anche alla modellistica relativa al processo FEL, nonché alla progettazione e realizzazione degli ondulatori.

Il contributo si estende poi anche alla proposta di attività di ricerca, in particolare nei settori della fisica, della chimica e delle scienze biologiche.

### **UNIVERSITA' DI ROMA "TOR VERGATA"**

Il contributo della Università di Roma "Tor Vergata" si articola in un utilizzo delle sue competenze nella progettazione, realizzazione e gestione di acceleratori avanzati e FEL, dei sistemi di trasporto e manipolazione di fasci di fotoni, della diagnostica relativa e della progettazione delle sale e degli apparati sperimentali.

Il contributo si estende poi anche alla proposta di attività di ricerca in settori della fisica, della chimica e delle scienze biologiche. Infine contribuirà al progetto delle strutture edilizie e degli impianti relativi ed a seguire la Direzione dei Lavori.

## 5. DESCRIZIONE DELLE PRESTAZIONI DELLA SORGENTE SPARX

In base alla discussione precedente, si può concludere che una sorgente FEL-SASE, in grado di fornire radiazione X coerente e di alta brillantezza nella regione intorno alle decine di nm fino a qualche Å, potrebbe soddisfare una larghissima fetta di utenza per applicazioni di tipo scientifico ed industriale.

Una stima preliminare, basata sulle considerazioni prima svolte, ci permette di stabilire due zone spettrali complementari di interesse per le applicazioni nelle regioni di lunghezze d'onda da 13.5nm fino a 3 Å.

Una volta individuate le regioni spettrali, possiamo determinare preliminarmente i parametri degli ondulatori utilizzando le caratteristiche del fascio di elettroni riportate in Tabella 5.I.

**Tab 5.I - Parametri Fascio di elettroni**

Energia	2.5	GeV
Corrente di picco	2.5	kA
Emittance (media)	2	mm-mrad
Emittance (slice)	1	mm-mrad
Dispersione energetica relativa	0.1	%

Poiché l'energia di uscita del fascio di elettroni è 2.5 GeV, con un intervallo di variabilità del 5%, le due regioni saranno coperte utilizzando due diversi ondulatori (più dettagliatamente descritti nel seguito), i cui parametri vengono riportati nelle Tabelle 5.II e 5.III. Nel presente contesto l'accordabilità in frequenza del sistema viene garantita dal meccanismo di generazione coerente di armoniche e dalla possibilità di variare, entro certi limiti, parametri quali l'energia del Linac ed il campo magnetico dell'ondulatore.

**Tab. 5.II – Parametri ondulatore per operazione a 13.5 nm**

Ondulatore 2 – UM2	
Configurazione	Halbach
Periodo	5 cm
K	4.88 (a 13.5 nm)
gap	12.16 mm (a 13.5 nm)
Campo residuo	1.25 T

**Tab. 5.III – Parametri onduttore per operazione a 1.5 nm**

Onduttore 1 – UM1	
Configurazione	Halbach
Periodo	3 cm
K	1.67 (a 1.5 nm)
gap	12.67 mm (a 1.5 nm)
Campo residuo	1.25 T

Uno schema del sistema è presentato in figura 5.1, in cui sono mostrati i due ondulatori, le cui caratteristiche vengono riportate nelle tabelle 5.II e 5.III, posti ai lati dell'asse orizzontale del Linac.

Il fascio di elettroni estratto dal Linac viene iniettato, attraverso una linea di trasporto, che sarà discussa in seguito, negli ondulatori. Viene successivamente trasportato negli ondulatori divisi in sezioni da 1.8m intervallate da zone di foccheggiamento necessarie per il confinamento trasverso del fascio di elettroni.



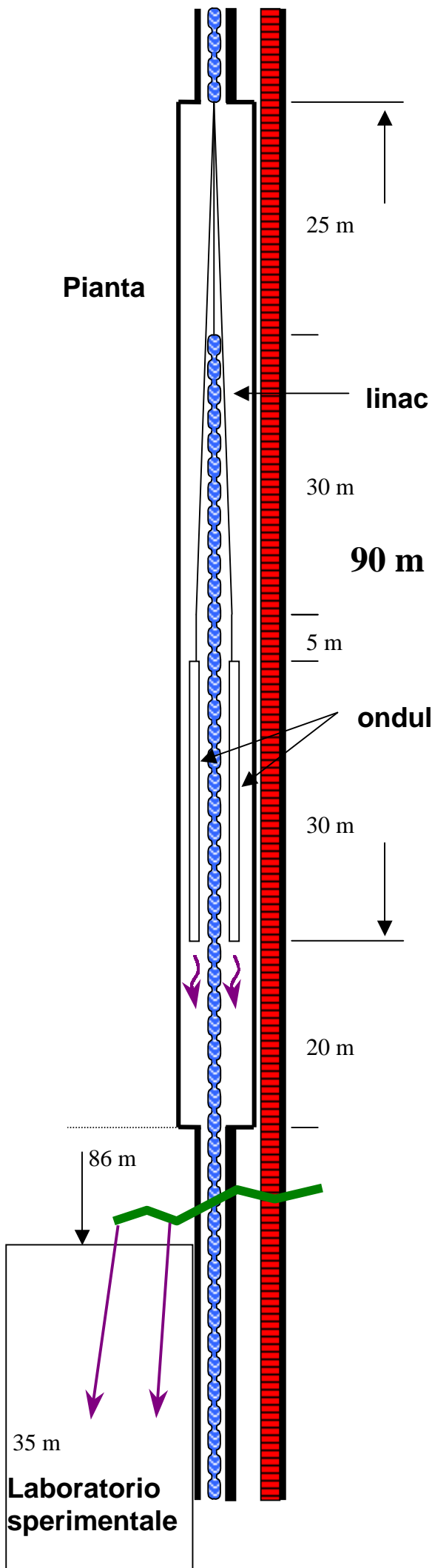


Fig.5.1 - Schema del sistema sparx

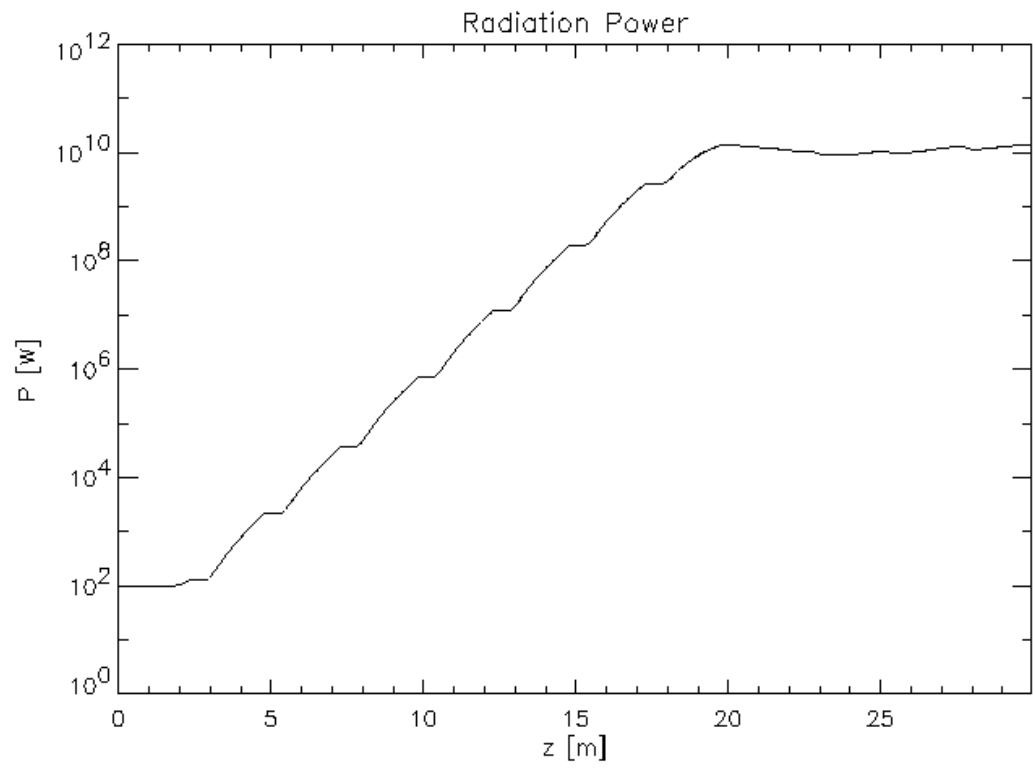
Come tutti i sistemi Laser l'evoluzione del FEL SASE sarà caratterizzato da un processo di guadagno e di saturazione. Come mostrato nelle figure 5.2 a e b, relative alla generazione di radiazione X a 13.5 e 1.5nm, durante il passaggio degli elettroni nell'ondulatore e nel relativo sistema di trasporto, si determinano le condizioni per la generazione e la crescita del fascio di raggi X. Tale evoluzione può essere distinta in almeno tre fasi

- a) nascita del segnale e regime caotico
- b) crescita esponenziale
- c) regime di saturazione.

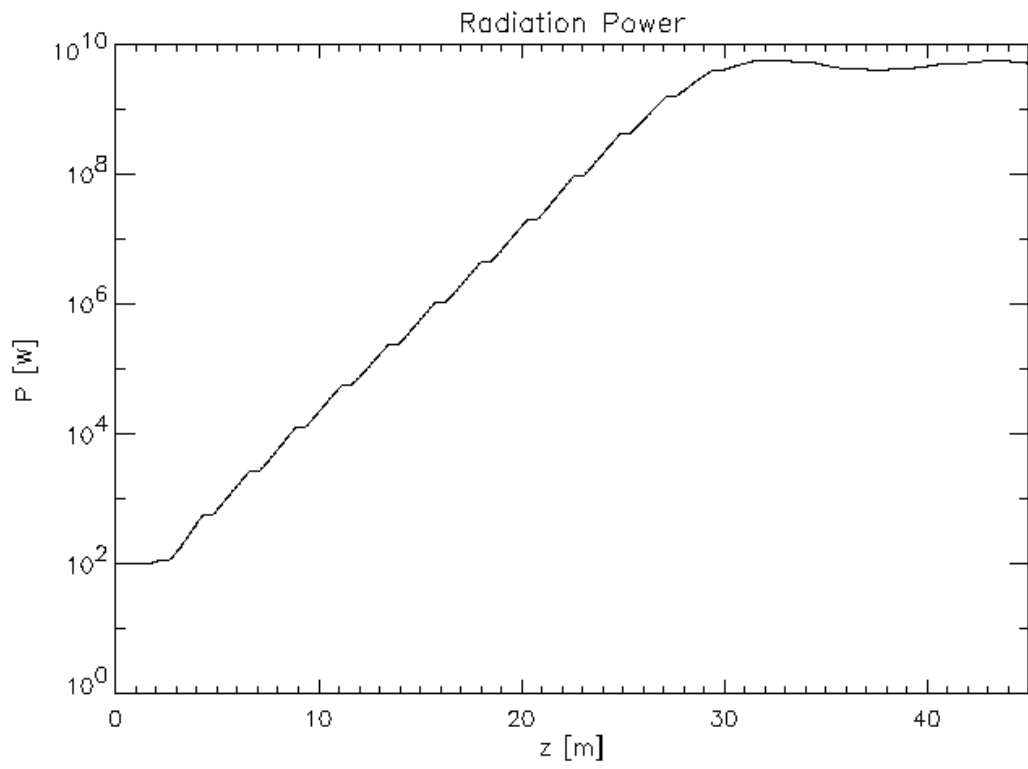
Le zone simili a gradini corrispondono al passaggio del fascio di elettroni e di radiazione attraverso le sezioni di focheggiamento, dove non è presente materiale magnetico da ondulatore e pertanto il fascio laser non subisce amplificazione. E' evidente che l'asse orizzontale delle figure 5.2 si riferisce all'ondulatore con l'inclusione delle sezioni di focheggiamento, di cui sarà detto in dettaglio nella sezione 8.1.1.

La lunghezza relativa al massimo della potenza nelle figure 5.2 non è pertanto quella di saturazione dell'ondulatore, ma include le sezioni di focheggiamento, che ad esempio nel caso dell'operazione a 1.5 nm possono essere stimate pari a 4 m. Cosicché la lunghezza effettiva di saturazione dell'ondulatore è 24.5 m.

Nelle condizioni di saturazione si ottiene la massima cessione di potenza dagli elettroni al fascio X.



**Fig. 5.2 a - Evoluzione del segnale laser a 13.5 nm**



**Fig. 5.2 b - Evoluzione del segnale laser a 1.5 nm**

La lunghezza dell'ondulatore, necessaria per portare il sistema nella fase c) è nota come lunghezza di saturazione e, al pari della potenza di saturazione, è una delle quantità cruciali dell'intero sistema la cui corretta determinazione richiede una accurata analisi teorica e progettuale.

Per quanto concerne la presente proposta, il problema del calcolo delle prestazioni del sistema è stato affrontato tramite l'utilizzo di 5 codici di calcolo indipendenti, riconosciuti in ambito internazionale, già utilizzati per il progetto di altre sorgenti FEL SASE. I codici vengono qui appresso menzionati, insieme agli istituti presso cui sono stati sviluppati

- 1) GINGER.....LBNL
- 2) GENESIS.....DESY
- 3) MEDUSA.....NRL
- 4) PROMETEO.....ENEA
- 5) PERSEO.....ENEA

Ritornando al grafico di figura 5.2b e relativo all'evoluzione del segnale calcolata con GENESIS per l'operazione a 1.5nm, si nota che, compatibilmente alle caratteristiche di fascio di elettroni di cui alla Tabella 5.I e a parte le sezioni di focheggiamento (si veda sez. 8.1.1), la lunghezza dell'ondulatore necessaria per raggiungere la potenza di saturazione pari a  $10^{10}$ W, è circa 24.5 m (qui, come nel seguito, per lunghezza di saturazione si intende quella magnetica senza l'ingombro dovuto al sistema di focalizzazione che porta ad un incremento dell'ingombro totale di circa il (20-25)% (vedi Sez.8.2.1)). Tali dati sono confermati dagli altri codici, con scarti che rientrano entro qualche %.

L'utilizzo dei codici di cui sopra ha permesso di stabilire le prestazioni riportate nella Tabella 5.IV e relative alle operazioni a 13.5nm e 1.5nm rispettivamente.

**Tab. 5.IV – Prestazioni del laser a 1.5 e 13.5 nm**

Lunghezza d'onda	1.5 nm	13.5 nm
Lunghezza di saturazione	24.5 m	14.5 m
Potenza	$10^{10}$ W	$4 \cdot 10^{10}$
Potenza 3° arm.	$2 \cdot 10^8$ W	$5 \cdot 10^9$
Potenza 5° arm.	$3 \cdot 10^7$ W	$2 \cdot 10^8$
Brillanza*	$1.8 \cdot 10^{31}$	$2 \cdot 10^{32}$
Brillanza* 3° arm.	$10^{29}$	$10^{31}$
Brillanza* 5° arm.	$9 \cdot 10^{28}$	$3 \cdot 10^{29}$

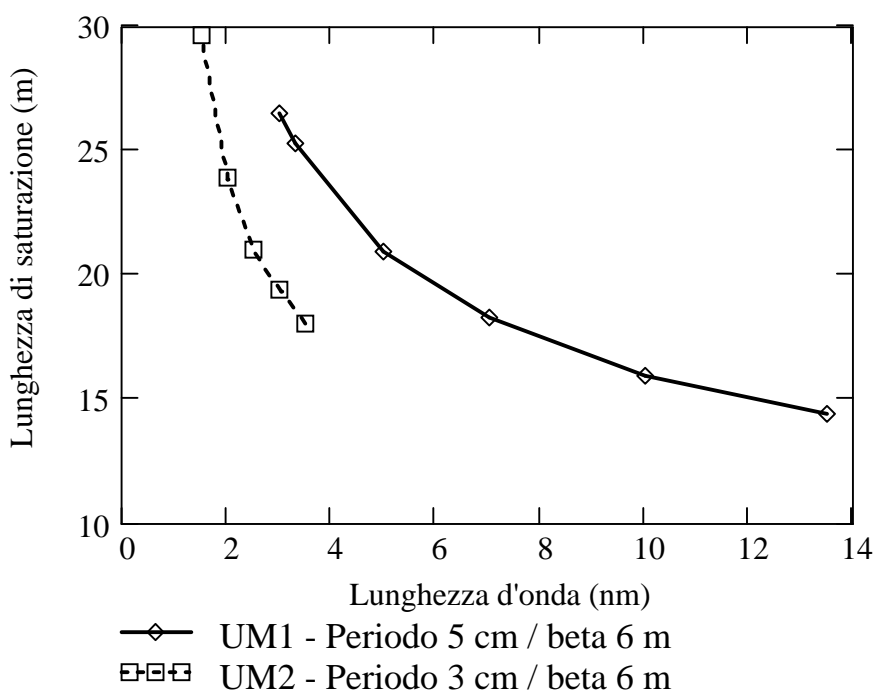
(\*Picco in fotoni/sec/0.1%bw/(mm mrad)<sup>2</sup>)

Si noti che nella tabella precedente abbiamo riportato la lunghezza di saturazione dell'ondulatore calcolata senza margini di tolleranza di cui si discuterà nella sezione 8.2.1.

Abbiamo già menzionato la possibilità di estendere l'intervallo di accordabilità, utilizzando il meccanismo di generazione non lineare di armoniche coerenti. Tale meccanismo può essere spiegato come segue, il mezzo attivo del sistema FEL SASE, ossia il fascio di elettroni in interazione con l'ondulatore, al crescere della intensità dell'armonica fondamentale, si comporta come un mezzo non lineare in grado di eccitare coerentemente non solo la lunghezza d'onda risonante o fondamentale, ma anche le sue sotto-armoniche di ordine dispari, se si sceglie un ondulatore a polarizzazione lineare, come nel caso della presente proposta.

Limitandoci pertanto alla possibilità di generare radiazione coerente di armonica fino alla 5<sup>a</sup>, è possibile estendere l'intervallo di accordabilità della tabella 5.IV fino a 3 Å. Non ci sono motivi di principio che impediscano l'operazione oltre la 5<sup>a</sup> armonica. La motivazione del taglio alla 5<sup>a</sup> armonica sarà discussa nel seguito.

In figura 5.3 riportiamo la lunghezza di saturazione del sistema in funzione delle lunghezze d'onda di operazione, calcolate con il codice PERSEO.



**Fig. 5.3 - Andamento delle lunghezze di saturazione del sistema in funzione delle lunghezze d'onda**

Le brillanze in funzione delle lunghezze d'onda sono riportate in figura 5.4 e includono anche l'operazione ad armoniche superiori.

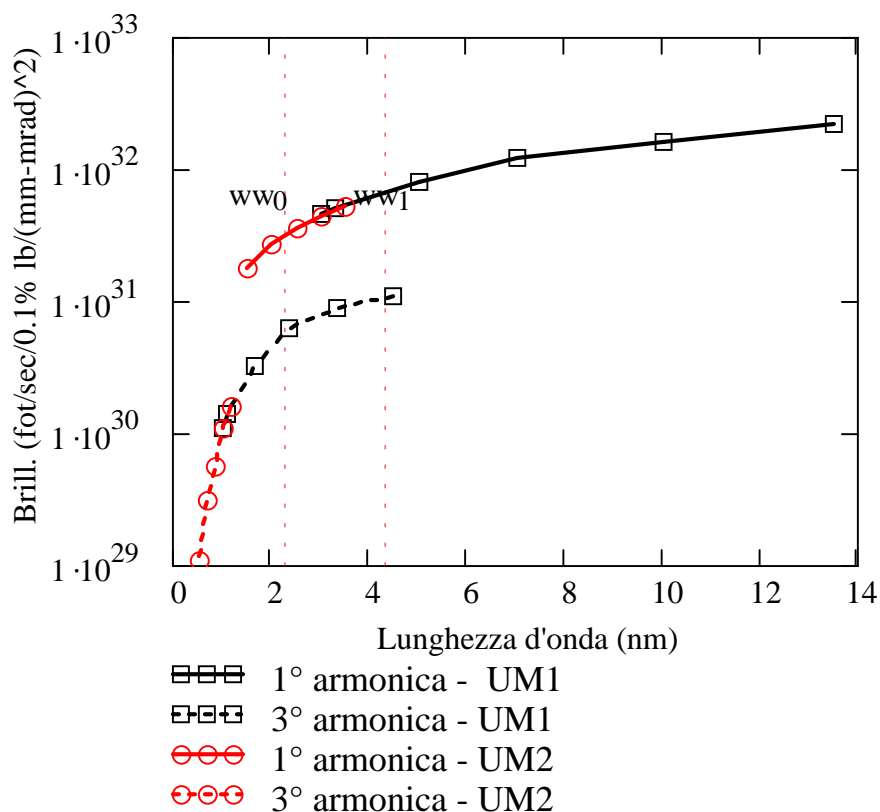


Fig. 5.4 - Andamento della brillantezza in funzione della lunghezza d'onda.

I dati completi delle prestazioni del sistema, con l'inclusione delle armoniche, possono essere desunte dalla tabella 5.IV. In conclusione la sorgente da noi presa in considerazione è in grado di fornire radiazione coerente fino a circa  $3 \text{ \AA}$ , con brillanze di picco significativamente maggiori delle sorgenti convenzionali.

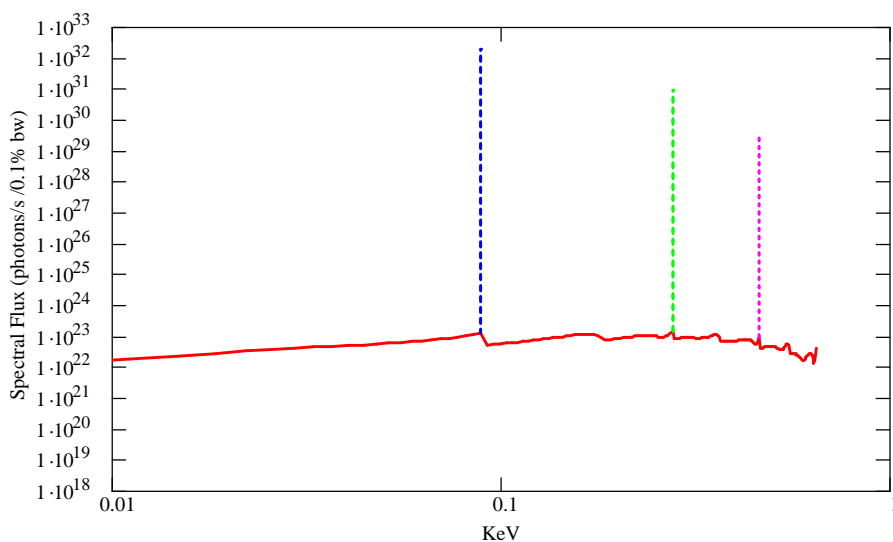
Prima di chiudere questa parte descrittiva è opportuno commentare due punti, relativi alla possibilità di sfruttare il meccanismo di generazione di armoniche oltre la quinta e di utilizzare l'intero sistema anche come sorgente di luce di sincrotrone.

Per quanto concerne il primo punto, va fatto notare che il calcolo delle prestazioni del sistema, includendo armoniche di ordine sempre crescente, implica tempi di calcolo sempre crescenti. Sono stati ottenuti valori di brillanze per la generazione non lineare di armonica fino alla nona ed i risultati mostrano che è possibile ottenere valori di brillantezza ragguardevoli anche in zone prossime all'Angstrom.

Citiamo questo risultato come una concreta possibilità che però al momento è solo un risultato numerico che richiede ulteriori conferme.

Riguardo al secondo punto, è evidente che, al di fuori delle lunghezze d'onda risonanti e delle relative armoniche, è possibile ottenere ordinaria radiazione di sincrotrone e per quanto concerne il caso dei due ondulatori, presi in considerazione nella presente proposta, si ottengono le brillanze spettrali di picco riportate nelle figure 5.5 e 5.6. Le figure mostrano l'andamento della brillantezza spettrale totale, a parte i picchi alle frequenze risonanti e alle relative armoniche, associati con l'operazione SASE, è evidente che le brillanze ottenibili sono superiori a quelle delle sorgenti attuali di almeno due ordini di grandezza.

**E= 2.5 GeV, I= 2.5 KA,  $\lambda=13.48$  nm,  $\lambda_u=5$  cm, k=4.88, N=290**

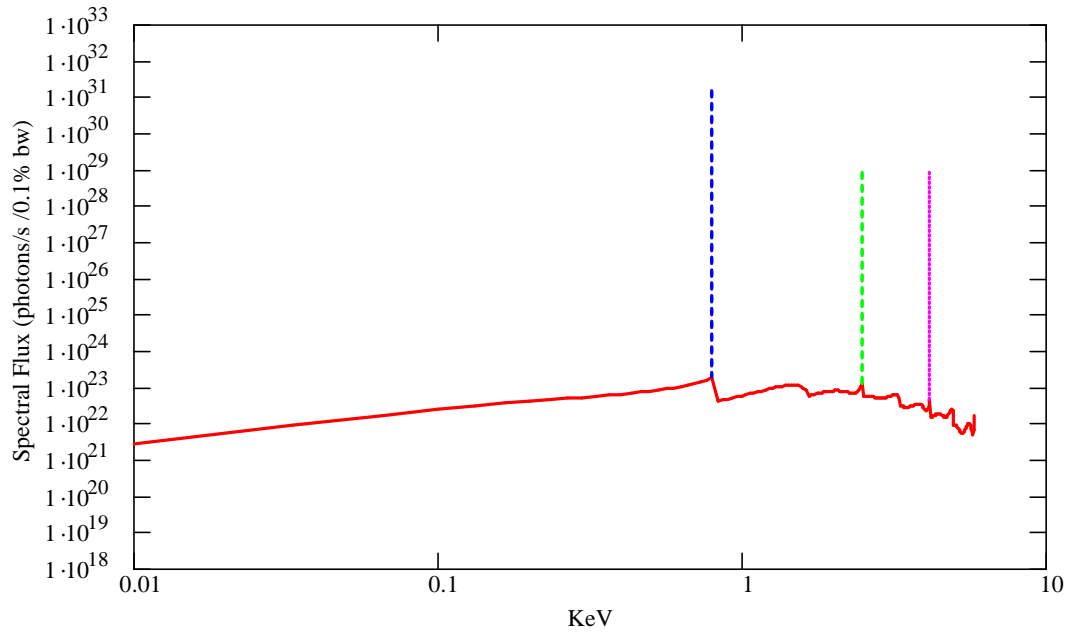


**Fig. 5.5 - Brillanza spettrale con inclusione dei contributi di luce di sincrotrone ordinari: onduttore UM2.**

E' inoltre opportuno mettere in evidenza che oltre alla brillantezza un ulteriore vantaggio è offerto, in questo ultimo caso, dalla struttura temporale del fascio di radiazione con impulsi di durata temporale dell'ordine delle centinaia di fs.



**E= 2.5 GeV, I= 2.5 KA,  $\lambda=1.5$  nm,  $\lambda_u=3$  cm, k=1.67, N=967**



**Fig. 5.6 - Brillanza spettrale con inclusione dei contributi di luce di sincrotrone ordinari: onduttore UM1.**

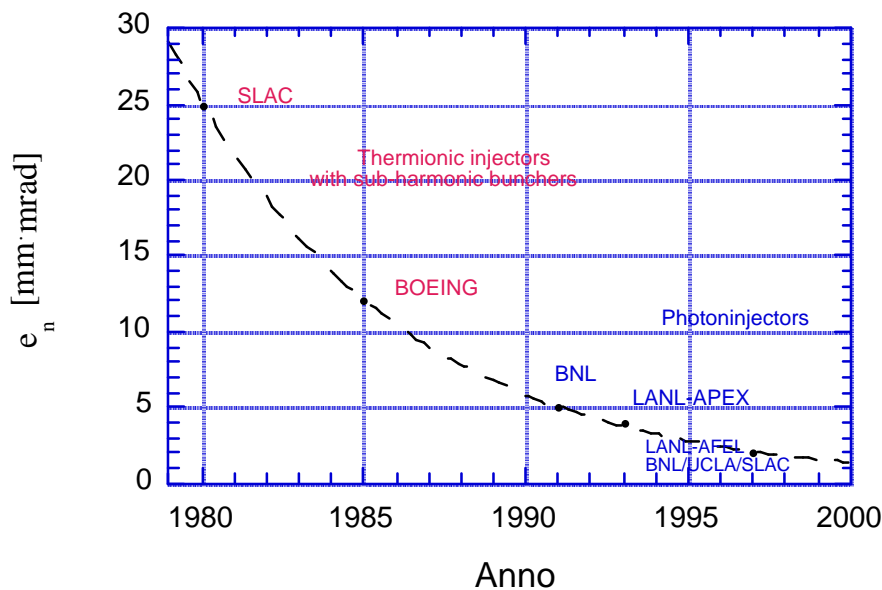
## 6. VALIDITÀ ED ORIGINALITÀ DEI CONTENUTI SCIENTIFICI E TECNOLOGICI E INNOVATIVITÀ DELLE TECNOLOGIE

Come discusso nei capitoli precedenti, un FEL SASE operante nel range dei raggi X dipende criticamente da tre componenti del sistema costituente: l'iniettore, preposto alla generazione del fascio a bassa emittanza, l'acceleratore, che portando il fascio all'energia finale deve preservare tale emittanza e comprimere al tempo stesso il pacchetto di elettroni fino al suo valore finale di corrente di picco, e l'ondulatore, dove l'instabilità del meccanismo FEL converte parte dell'energia cinetica del fascio di elettroni in un fascio coerente di fotoni ad altissima brillantezza.

In seguito all'enorme crescita delle sorgenti di luce di sincrotrone nell'arco degli ultimi 20 anni, gli ondulatori, che rientrano nella famiglia più ampia degli *insertion devices*, hanno raggiunto prestazioni di altissimo livello: gli ondulatori per i SASE X-FEL saranno quindi costituiti da apparati che sono attualmente lo stato dell'arte, capaci di soddisfare i requisiti di progetto.

Per quanto riguarda i problemi legati alla conservazione dell'emittanza lungo l'acceleratore, i SASE X-FEL sfrutteranno direttamente la ricerca ed il progresso prodotti nella tecnologia e nella fisica degli acceleratori dagli studi sviluppati per i collisori lineari: questi hanno infatti fornito strumenti e nuove conoscenze che verranno applicati nella realizzazione delle sorgenti di luce di sincrotrone di quarta generazione.

Peraltro, il settore dove si sono concentrati nell'ultima decade gli sforzi maggiori di ricerca e sviluppo è stato quello della generazione di fasci di elettroni ad alta brillantezza: i notevoli progressi registrati in tale settore hanno infatti reso possibile concepire per la prima volta un SASE X-FEL nel 1992, per la precisione durante il workshop su "*Fourth Generation Light Sources*" tenutosi a SLAC nel mese di marzo di quell'anno. Numerosi laboratori, soprattutto americani, hanno contribuito a tale sforzo scientifico e tecnologico, che fu pilotato all'inizio degli anni '90 anche dalle richieste di applicazioni militari del FEL. I risultati di tale sforzo sono riassunti schematicamente nella figura 6.1, che riporta l'andamento negli anni dell'emittanza misurata per fasci di elettroni (pacchetti da 1 nC), a partire dall'era degli iniettori termoionici avanzati (anni '80) fino a quella dei fotoiniettori, che dura tuttoggi.



**Fig. 6.1** Progresso nella minima emittanza misurata per un fascio di elettroni dotato di 1 nC di carica per pacchetto.

Sebbene i fotoiniettori siano oggi riconosciuti come il metodo più efficace di generazione di fasci di elettroni ad alta brillantezza con pacchetti ultra-corti (sotto il ps), e nonostante il grande progresso effettuato, l'emittanza minima finora misurata è di 2 mm·mrad a 1 nC, con un record a 0.8 mm·mrad per 0.5 nC di carica (Ref. 6.1). E' necessario pertanto un ulteriore sforzo di miglioramento delle prestazioni di questi apparati, in termini della brillantezza prodotta, per poter arrivare a soddisfare i requisiti di un SASE X-FEL. Per questo motivo quasi tutti i grandi laboratori internazionali sono attivamente impegnati in questa sfida: le applicazioni dei fasci di elettroni ultra-corti ad altissima brillantezza trascendono infatti il campo dei SASE X-FEL per estendersi con grande rilevanza ai settori dell'accelerazione ad altissimo gradiente mediante tecniche a plasma e/o mediante lasers, che hanno un impatto strategico sui futuri acceleratori di nuova concezione.

Il gruppo proponente ha lungamente collaborato nel passato con molti di questi laboratori (e nella fattispecie con UCLA, SLAC e DESY), ma in particolare ha proposto in questi ultimi anni due nuove concezioni di operazione e progettazione di un fotoiniettore che, nelle previsioni teoriche, corroborate anche dalle simulazioni numeriche, promettono un significativo innalzamento della brillantezza di fascio prodotta.

Queste due nuove concezioni consistono in:

- Un nuovo schema di accoppiamento del cannone RF con le prime sezioni acceleranti. Questo è basato sulla teoria dell'involuppo invariante per i fasci laminari (Ref. 6.2) e sull'ottimizzazione delle oscillazioni di emittanza che derivano dal moto trasverso di plasma effettuato dal fascio nei primi 150 MeV, che vengono qui considerati come l'iniettore vero e proprio (Ref. 6.6).
- Un nuovo schema di compressione del pacchetto di elettroni (Ref. 6.3), che si basa su un effetto di oscillazione di sincrotrone controllata all'interno della prima struttura accelerante, la quale porta il fascio dai 6 MeV forniti dal cannone RF fino a 35-40 MeV, comprimendo allo stesso tempo il pacchetto di elettroni di un fattore da 5 a 10 volte. Questa tecnica è anche denominata *bunching* di velocità e si contraddistingue dalle altre tecniche classiche di compressione, che applicano tutti effetti balistici, cioè in assenza di forze longitudinali applicate. Esse si basano infatti, ad energia media del pacchetto costante, su di una rotazione libera della distribuzione nello spazio delle fasi longitudinale del fascio, che viene indotta da una opportuna condizione iniziale di correlazione posizione-energia; nel *bunching* di velocità, al contrario, la funzione di accelerazione è intrinsecamente legata a quella di compressione, ed integrata in un unico apparato, consentendo in tal modo di controllare al meglio le oscillazioni di emittanza durante la compressione e mantenendo il valore finale di emittanza molto prossimo a quello iniziale. Il *bunching* di velocità applica una focalizzazione longitudinale al pacchetto di elettroni, facendogli compiere un quarto di oscillazione di sincrotrone nel campo dell'onda RF (componente co-propagante). La condizione di massima compressione si ottiene quando il fascio, iniettato ad una velocità inferiore a quella di fase dell'onda, viene estratto dalla sezione accelerante con velocità pari a quella dell'onda (ciò grazie al guadagno di energia cinetica prodotto dall'accelerazione).

La nuova concezione di *matching* fra cannone e sezione acceleranti descritta nel primo punto è stata incorporata nelle proposte per X-FEL SASE presentate a SLAC (LCLS) e a DESY (TESLA-FEL) (Ref. 6.4), cui il gruppo proponente pure collabora. Ciò è avvenuto grazie alle previsioni, osservate nelle simulazioni, di valori record per l'emittanza (Ref. 6.6), con un miglior risultato finora raggiunto di 0.42 mm·mrad all'uscita dell'iniettore.

Il compressore a Radio-Frequenza, basato sul *bunching* di velocità (secondo punto), è la componente che contraddistingue la presente proposta in modo unico rispetto alle altre presentate in ambito nazionale ed internazionale: questo nuovo metodo di compressione è stato oggetto di studi numerici che indicano la possibilità di comprimere il pacchetto fino a circa 700 A con una modesta crescita dell'emittanza (fino a 0.8 mm·mrad). Le prime evidenze sperimentali di tale fenomeno di

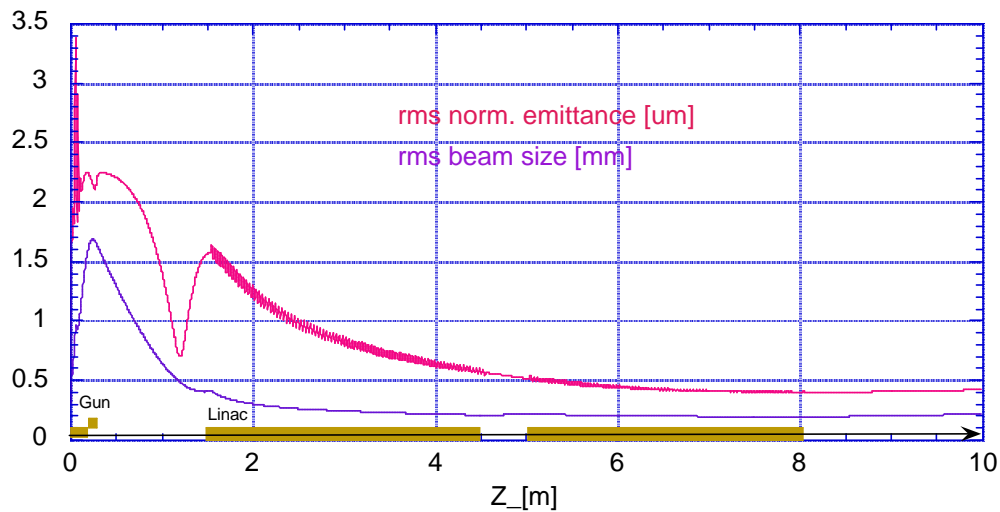
compressione sono in fase di osservazione ed analisi a UCLA, con risultati preliminari molto incoraggianti (Ref. 6.5).

Occorre notare a tal proposito che, nell'ambito dell'attività di concezione di nuove idee e studi teorici sulla dinamica di fascio nei fotoiniettori, gran parte è stata assunta negli ultimi anni dallo sviluppo del modello teorico che si basa sul concetto di involuppo invariante (Ref. 6.2): questo descrive il fascio come un plasma freddo relativistico ad una sola componente che, propagandosi a velocità relativistica dal fotocatodo\* fino all'uscita dell'iniettore (150 MeV), compie oscillazioni di plasma trasverse dovute all'azione di confinamento esercitata dai campi focalizzanti esterni, prodotti dai solenoidi (di tipo magnetostatico) e dal campo RF accelerante (tramite l'effetto di focalizzazione ponderomotrice RF). Il fascio-plasma confinato trasversalmente è soggetto ad un effetto di diluizione dell'emittanza proiettata trasversa, causata dalla differente frequenza di plasma delle varie fette in cui il bunch può essere sezionato a partire dalla testa fino alla coda. Tali fette infatti non si rimescolano fra di loro, visto che il moto longitudinale è di tipo laminare (assenza di moto di sincrotrone), quindi si comportano come fasci indipendenti. L'involuppo invariante rappresenta una soluzione esatta dell'equazione di involuppo per il fascio-plasma, che si propaga con moto laminare anche nel piano trasverso: sotto questa condizione la frequenza di plasma risulta invariante lungo il pacchetto, cioè non dipende in prima approssimazione dal valore locale di corrente corrispondente alla specifica fetta. È proprio tale invarianza che permette di controllare le oscillazioni di emittanza associate al moto di plasma del fascio: un'opportuna configurazione dell'iniettore garantisce che l'emittanza raggiunge un valore minimo all'uscita dell'iniettore stesso. In aggiunta, una distribuzione temporale e spaziale uniforme dell'impulso laser che genera i fotoelettroni garantisce la minimizzazione delle componenti non lineari del campo di carica spaziale nel pacchetto, con conseguente minimizzazione del valore di emittanza all'uscita (Ref. 6.6).

Nella Figura 6.2 viene riportato l'andamento dell'emittanza trasversa normalizzata e dell'involuppo del fascio lungo l'iniettore sotto queste condizioni ottimali di propagazione, come previsto dal codice HOMDYN (Ref. 6.6). Si è trovato un accordo eccellente fra questo codice semi-analitico, basato su una descrizione a multi-involuppo che è in grado di studiare gli effetti di spread della frequenza di plasma sul pacchetto, ed i più accurati codici a multi-particella (PARMELA, ASTRA): il valore finale di emittanza differisce di non più del 30%.

---

\* già dopo 5 mm dalla superficie del fotocatodo gli elettroni emessi, accelerati dal campo elettrico presente nella cavità RF del cannone, assumono una velocità pari al 90% di quella della luce nel vuoto

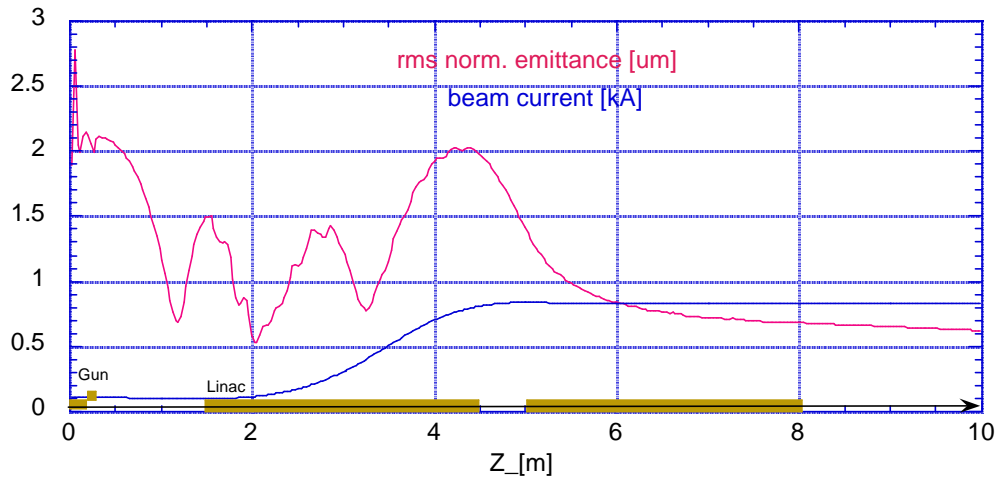


**Figura 6.2** Andamento dell'inviluppo e dell'emittanza trasversa normalizzata del fascio in un fotoiniettore ottimizzato operante ad alto gradiente (fino a 140 MV/m nel cannone RF) con strutture acceleranti operanti a 2.856 GHz, in assenza di compressione (cioè a corrente costante 100 A)

Il caso sopra descritto prevede una propagazione a corrente costante: la lunghezza del pacchetto resta cioè costante, a circa 10 ps, lungo tutto l'iniettore.

Nel caso che la seconda sezione accelerante venga fatta operare in condizioni di compressione RF - ciò si ottiene iniettando il fascio ad una fase in cui il campo accelerante è nullo all'iniezione - la corrente cresce dagli iniziali 100 A (corrispondenti ad un pacchetto lungo 10 ps) fino a 800 A, mentre l'energia cresce da 6 a 42 MeV. Abbiamo recentemente generalizzato l'espressione analitica dell'inviluppo invariante al caso del compressore RF, nella situazione particolare in cui la corrente cresce circa allo stesso rate dell'energia cinetica: questa è la nuova condizione di equilibrio che consente di ottenere nuovamente una frequenza di plasma che non dipende dalla posizione della fetta nel pacchetto, ciò che minimizza la diluizione dell'emittanza proiettata, consentendo di ottenere valori prossimi a 1 mm·mrad anche per valori di corrente vicini a 1 kA. Questa condizione di equilibrio si ottiene regolando opportunamente il campo magnetico di focalizzazione dei solenoidi avvolti attorno alla struttura accelerante del compressore RF: essa è la condizione per ottenere massima brillantezza all'uscita dell'iniettore. In figura 6.3 è mostrato l'andamento della corrente nell'iniettore durante la compressione RF, insieme alle oscillazioni dell'emittanza trasversa normalizzata: queste sono più pronunciate rispetto al caso senza compressione (figura 6.2) a causa dell'aumento di densità di carica nel pacchetto, che viene appunto

compresso di un fattore 8 in questo esempio particolare: l'emittanza finale prevista da HOMDYN è di 0.6 mm·mrad.



**Figura 6.3 Andamento della corrente e dell'emittanza trasversa normalizzata del fascio in un fotoiniettore operante con compressione RF. L'energia finale e' circa 100 MeV.**

Sono state effettuate anche le prime analisi numeriche con PARMELA, per il momento non sistematiche, ma solo esplorative. A UCLA si è trovato un valore finale di corrente di 1.1 kA con 1.5 mm·mrad di emittanza (Ref. [6.5]), mentre le nostre simulazioni hanno finora prodotto un punto di lavoro a corrente più bassa, 500 A, abbinato però ad un'emittanza di poco superiore rispetto al caso standard in assenza di compressione, cioè 0.6 mm·mrad. È ragionevole prevedere che, grazie ad un'estensiva analisi di simulazione che ottimizzi il valore dei parametri chiave (gradiente accelerante nel compressore, fase di iniezione, focalizzazione dei solenoidi addizionali localizzati attorno alla sezione accelerante), si possa raggiungere 1 kA con valori di emittanza compatibili con i requisiti FEL, cioè circa 1 mm·mrad all'uscita dell'iniettore.

Il gruppo proponente collabora inoltre ad un esperimento pilota in corso di realizzazione al Lawrence Livermore National Laboratory, finalizzato a controllare le potenzialità della compressione RF in un sistema di iniettore-Linac simile a quello qui descritto, anche se non completamente ottimizzato per il raggiungimento della minima emittanza.

Sulla base di quanto qui illustrato, si può concludere che lo schema di iniettore più promettente (descritto più avanti al capitolo 8 in maggiori dettagli), per raggiungere prestazioni di brillantezza necessarie a pilotare un SASE X-FEL, sarà un fotoiniettore basato su tecnologia RF *normal conducting* a 2.856 GHz, dotato di un cannone RF del tipo di quello sviluppato a SLAC/UCLA (Ref. 6.7), capace di raggiungere i 140 MV/m sul fotocatodo, e accoppiato ad una

struttura accelerante di tipo *Traveling Wave* alla stessa frequenza, operante in modo compressore RF. Questa prima sezione accelerante è poi seguita da un congruo numero di altre strutture dello stesso tipo operanti in normale modo accelerante, e capaci di accelerare il fascio fino a circa 150 MeV, energia minima oltre la quale il fascio-plasma sopra descritto, soggetto a moto quasi-laminare, compie una graduale transizione ad uno stato di fascio-gas, la cui propagazione risulta gradualmente dominata dal moto incoerente di betatrone invece che dal moto collettivo di plasma. Altri effetti collettivi, ad esempio l'interazione con le pareti (*wake-fields*), risulteranno a questo punto più rilevanti, e saranno controllati dal confinamento del fascio-gas operato a sua volta dagli elementi di ottica distribuiti lungo il Linac.

L'originalità della presente proposta, per quanto riguarda lo schema dell'acceleratore, è quindi anche quello di evidenziare che l'accoppiamento di un iniettore, basato su tecnologia *normal conducting* a 2.856 GHz, con un Linac superconduttivo, funzionante a 1.3 GHz, può offrire la possibilità al tempo stesso di raggiungere la brillantezza di picco così cruciale e necessaria al funzionamento del SASE X-FEL, e di conservare la grande flessibilità operativa e la maggiore brillantezza media accessibile con un acceleratore superconduttivo.

Le problematiche tecnologiche, relative a questo accoppiamento di tipo ibrido iniettore-Linac con frequenze differenti, sono discusse più in dettaglio nel capitolo 8.

## REFERENZE

- 6.1 - V. Yakimenko *et al.*, "Submicron Emittance and Ultra Small Beam Size Measurements at ATF", Free El. Laser Conf., Darmstadt, Agosto 2001
- 6.7 - L. Serafini, J. B. Rosenzweig, *Phys. Rev. E* **55** (1997) 7565
- 6.8 - L. Serafini, M. Ferrario, "Velocity Bunching in Photoinjectors", ICFA Beam Dynamics Workshop "Physics of and Science with X-ray FELs" Arcidosso 2000, LNF-00-036
- 6.9 - TESLA TDR e LCLS Design Study Report.
- 6.10 - J.B. Rosenzweig, comunicazione privata
- 6.11 - M. Ferrario, J. E. Clendenin, D. T. Palmer, J. B. Rosenzweig, L. Serafini, "HOMDYN Study For The LCLS RF Photo-Injector" Proc. Of the 2<sup>nd</sup> ICFA Adv. Acc. Workshop on "The Physics of High Brightness Beams", UCLA, Nov., 1999.
- 6.12 - D.T. Palmer *et al.*, "Emittance studies of the BNL/SLAC/UCLA 1.6 cell photocathode rf gun," *Proc. Of the 1997 Particle Accelerator Conf.* (1997) 2687



## **7. COINVOLGIMENTO NEL PROGETTO DI OPERATORI DELL'UNIVERSITÀ, DEGLI ENTI PUBBLICI DI RICERCA, DELLE IMPRESE E DI ALTRI SOGGETTI PUBBLICI E PRIVATI NAZIONALI E INTERNAZIONALI**

I proponenti (CNR, ENEA, INFN, Università di Roma “Tor Vergata”) coinvolgeranno nel progetto una importante parte delle loro strutture di ricerca situate sia nell’area romana sia in altre importanti aree di ricerca (in particolare Milano e Bologna)

Nell’ambito delle attività previste ne progetto saranno coinvolte altre realtà di ricerca e industriali nazionali e internazionali. In particolare:

- È stato stipulato (febbraio 2002) un accordo di collaborazione tra DESY (Amburgo,D) e INFN, ENEA e CNR centrato sul tema: *“Cooperation in the efforts to carry-out the final stage of technological development and the construction of innovative light sources based on linear electron accelerators, in Hamburg and in Rome respectively”*. Tale accordo è la continuazione ed estensione di un precedente accordo stipulato tra DESY e INFN e venuto a scadenza nel 2001.
- Riguardo allo studio, simulazione e modellistica del processo FEL SASE è attiva da tempo la collaborazione internazionale “EXOTICA” (ARGONNE (USA), ENEA (I), LBNL (USA), NRL (USA), MAX-LAB (SWEDEN), DESY(D)) nell’ambito della quale è stato possibile un efficiente sviluppo di codici di calcolo e simulazione e il loro relativo benchmarking
- Collaborazione ad un esperimento pilota in corso di realizzazione al Lawrence Livermore National Laboratory, finalizzato a controllare le potenzialità della compressione RF in un sistema di iniettore-Linac.

Inoltre hanno espresso il loro interesse alla iniziativa e la loro disponibilità ad un futuro coinvolgimento varie istituzioni e enti sia accademici sia industriali. In Allegato A sono riportate le comunicazioni relative alle seguenti istituzioni:

- Consorzio Nazionale Interuniversitario per le Telecomunicazioni (Parma)
- Dipartimento di Chimica dell’Università degli Studi di Bari
- Dipartimento di Energetica dell’Università di Roma “La Sapienza”
- Dipartimento di Fisica dell’Università di Roma “La Sapienza”
- Dipartimento di Fisica dell’Università di Studi di Milano
- LABEN S.pA. (Vimodrone)
- Argonne National Laboratory (USA)

## 8. DESCRIZIONE DETTAGLIATA DELLA GRANDE INFRASTRUTTURA

### 8.1 Acceleratore

#### Introduzione

I due maggiori progetti che attualmente puntano alla produzione di un FEL SASE, in Germania (TESLA-FEL) e negli USA (LCLS), si basano su un acceleratore lineare dotato di un fotoiniettore a bassa emittanza e di una coppia di compressori magnetici per ottenere correnti di qualche kA. La principale differenza fra i due progetti consiste nella diversa tecnologia scelta per le strutture acceleranti, superconduttiva (linac freddo) a 1.3 GHz nel caso di TESLA-FEL, "normal conducting" (linac caldo) a 2.856 GHz nel caso di LCLS. Il gradiente accelerante è paragonabile nei due casi, circa 20 MV/m, il che comporta una lunghezza dell'acceleratore di circa 70-80 metri/GeV, se si include l'ottica e le diagnostiche.

I vantaggi di una soluzione "linac caldo" risiedono essenzialmente nella possibilità di generare fasci di maggiore brillantezza nell'iniettore, nella maggiore semplicità e nel minor costo. La soluzione "linac freddo", per contro, ha il vantaggio di poter lavorare con una maggiore corrente media e di poter operare con una migliore stabilità in energia.

Le due soluzioni "linac caldo" e "linac freddo" sono state prese in esame per l'elaborazione della presente proposta e sono risultate entrambe tecnicamente valide per il raggiungimento degli obiettivi, ma il maggior costo della soluzione fredda rende quest'ultima incompatibile con la realizzazione di un congruo numero di linee sperimentali, nell'ambito del budget attualmente reso disponibile dal FIRB.

Riteniamo tuttavia che in fase di progetto definitivo della sorgente sarà necessario approfondire nuovamente l'analisi delle due soluzioni, tenendo conto di fattori che potranno incidere sui requisiti tecnici e sui costi:

- possibile evoluzione verso la regione dell'  $\text{\AA}$  in prima armonica,
- esigenze e priorità espresse dagli utilizzatori riguardo all'intensità media della radiazione X,
- sviluppi tecnologici a seguito delle attività di R&D in corso,

- collaborazioni sinergiche con laboratori internazionali (accordo di collaborazione con il laboratorio DESY-Germania, dove è stato ottenuto il record di lunghezza d'onda di saturazione (80 nm) con un SASE)
- approvazione di progetti di collisori lineari di elevata energia in USA o Europa con conseguente prospettiva di produzione di componenti su larga scala.

### *Parametri e lay-out del linac*

L'acceleratore dedicato alla sorgente evolutiva FEL-SASE ha il compito di generare e accelerare pacchetti di elettroni ultra-brillanti fino all'energia di 2.5 GeV, in grado di produrre nell'ondulatore la radiazione coerente SASE a 13 nm e 1.5 nm.

Assegnate le dimensioni del pacchetto di elettroni di carica  $Q$  mediante i valori r.m.s.  $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ , la brillanza è definita da  $B_n = 2I/\epsilon_n^2$ , dove  $I = cQ/\sqrt{2\pi\sigma_z}$  è la corrente di picco,  $\epsilon_n = \gamma\sigma_x\sigma_y$  l'emittanza trasversa normalizzata.

I valori nominali del fascio di elettroni per la sorgente proposta sono:

- energia  $E=2.5$  GeV ( $\gamma=4892$ )
- corrente di picco 2.5 kA,
- emittanza normalizzata 2 mm•mrad,
- spread di energia 0.1%.

La produzione di un fascio di elettroni con queste caratteristiche, ad un'energia superiore a qualche GeV, in pacchetti di durata dell'ordine dei 100 fs, non è stata ancora realizzata, ma è compatibile con la odierna tecnologia degli acceleratori lineari, tenendo anche conto dell'intenso programma di ricerca e sviluppo attualmente in corso riguardante:

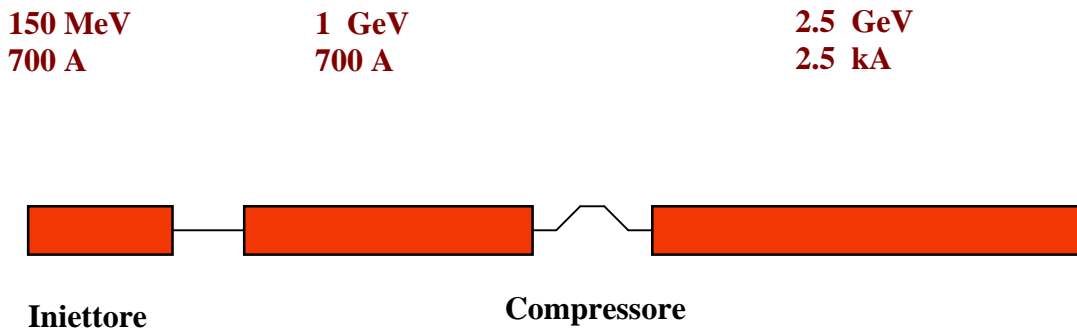
- La generazione di fasci a bassa emittanza e corrente di picco di circa 100 A, mediante tecniche di compensazione degli effetti della carica spaziale,

- La compressione longitudinale del pacchetto, dai 3 ps di durata all'uscita del fotoiniettore stesso fino ai 100 –200 fs all'ingresso dell'ondulatore, al fine di poter innalzare la corrente fino a 2-3 kA,
- Il controllo degli effetti della radiazione di sincrotrone coerente (CSR) nei compressori magnetici.

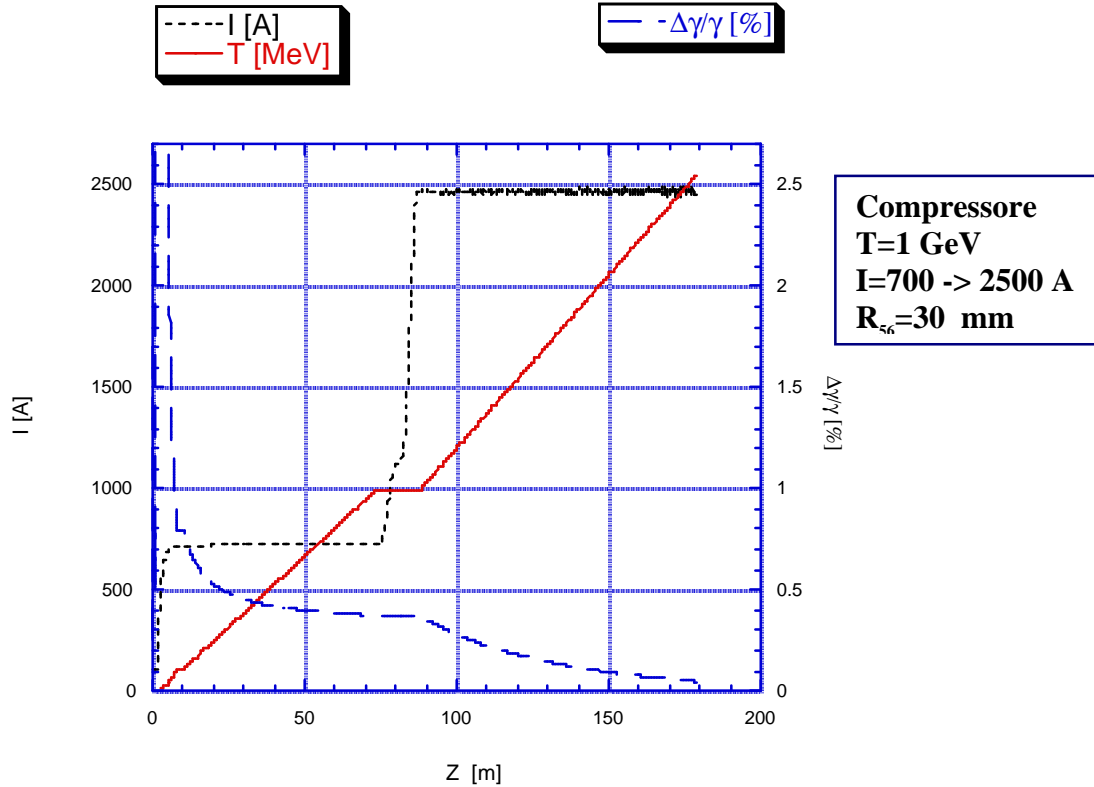
L'attività di R&D sui fotoiniettori ad elevata brillantezza di fascio è già stata avviata da alcuni anni in laboratori europei e USA, ottenendo fasci con caratteristiche non lontane dalle specifiche richieste per il presente progetto. Una attività di R&D sarà avviata prossimamente presso i Laboratori Nazionali di Frascati dell' INFN per la realizzazione di un fotoiniettore da 150 MeV, nell' ambito di una collaborazione con ENEA e CNR. Si esploreranno schemi innovativi di controllo dell' emittanza, mediante compensazione degli effetti di carica spaziale, e di compressione del pacchetto, mediante i campi a radiofrequenza (velocity buncher) e i compressori magnetici tradizionali. Gli obiettivi scientifici saranno la generazione di pacchetti di emittanza inferiore a 2 mm mrad, e una corrente di picco superiore a 500 A.

Lo sviluppo della tecnica di compressione a radiofrequenza assume particolare importanza dato che il funzionamento dei compressori magnetici attualmente utilizzati rappresenta uno dei problemi cruciali per le sorgenti SASE. Infatti le prime misure effettuate a Brookhaven, CERN e UCLA mostrano una rilevante crescita di emittanza causata dall'emissione della CSR nonché instabilità di microbunch. Una intensa attività di studio è attualmente in corso per elaborare modelli teorici e codici di simulazione in grado di fornire stime affidabili degli effetti generati dalla CSR. Nella presente proposta si adotta uno schema flessibile che prevede l' utilizzo di un compressore a RF all'energia di iniezione di 7 MeV in grado di elevare la corrente di un fattore maggiore di 5, e un secondo compressore, di tipo magnetico all' energia di 1 GeV in grado di innalzare la corrente di picco fino al suo valore finale, mediante un moderato fattore di compressione, riducendo in tal modo gli effetti della CSR. E' stato anche studiato uno schema di compressione basato esclusivamente su due compressori magnetici, che viene presentato per confronto.

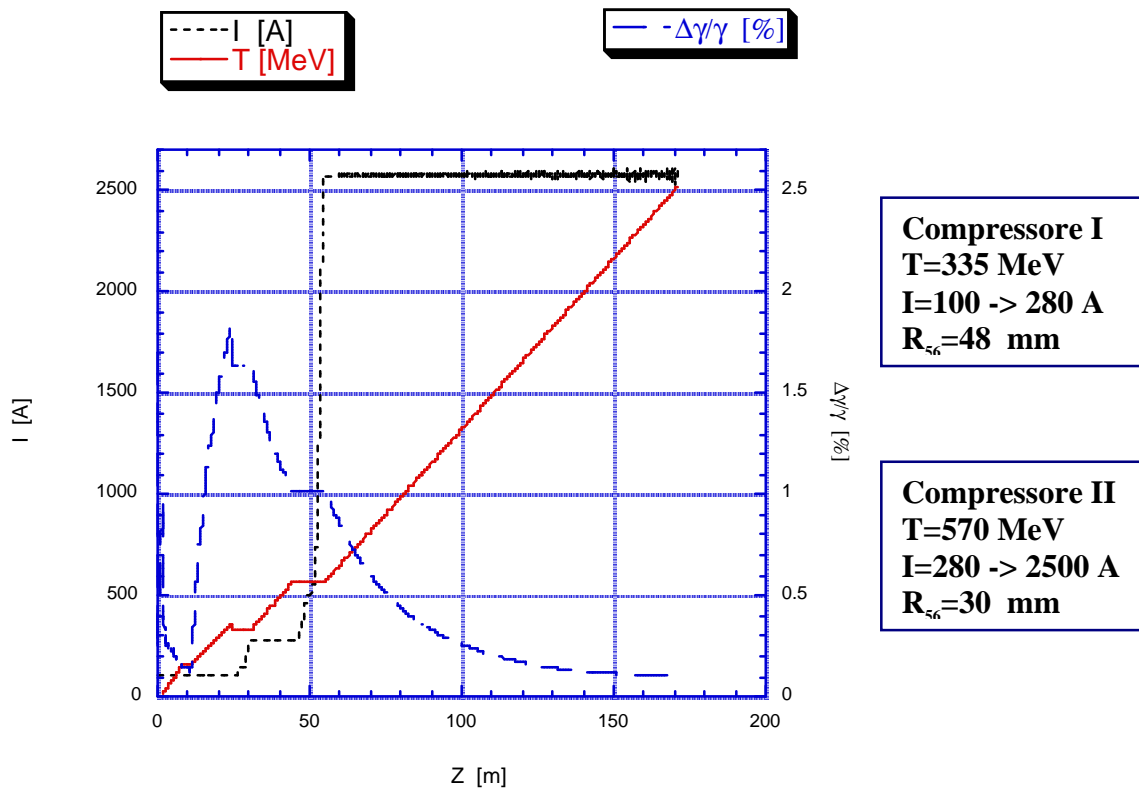
Il Lay-out del LINAC è mostrato in Fig. 8.1. Esso si compone di un iniettore da 150 MeV che include il "velocity buncher", di sezioni acceleratrici tipo SLAC fino a 1 GeV, di un compressore magnetico e di ulteriori sezioni acceleratrici che portano l'energia fino a 2.5 GeV. In Fig.8.2 a) e b) sono mostrati i grafici dell' andamento della corrente di picco e dello spread di energia lungo il LINAC, calcolati con il codice HOMDYN, nel caso in cui si utilizzino un compressore a radiofrequenza e un compressore magnetico, e per confronto il caso con due compressori magnetici.



*Fig. 8.1 Layout del LINAC*



*Fig. 8.2a - Evoluzione della corrente di picco e dello spread di energia lungo il Linac (un compressore a radiofrequenza e un compressore magnetico)*



*Fig. 8.2b - Evoluzione della corrente di picco e dello spread di energia lungo il Linac (due compressori magnetici)*

Questi risultati preliminari sono stati ottenuti in assenza degli effetti della CSR e dei wakefields trasversi, adottando un modello semplice per i wakefields longitudinali. Essi tuttavia mostrano chiaramente che mediante il compressore a radiofrequenza si possono raggiungere i valori nominali di corrente di picco con un modesto rapporto di compressione ( $R_{56}=30$  mm) nel compressore magnetico, riducendo in tal modo il degrado di emittanza e di spread di energia dovuti alla CSR. Uno studio più dettagliato e completo sarà effettuato in fase di progetto, con l'uso integrato dei codici PARMELA, HOMDYN, ELEGANT, e GENESIS e la realizzazione di simulazioni "start to end".

Riportiamo nel seguito la descrizione dei vari componenti.

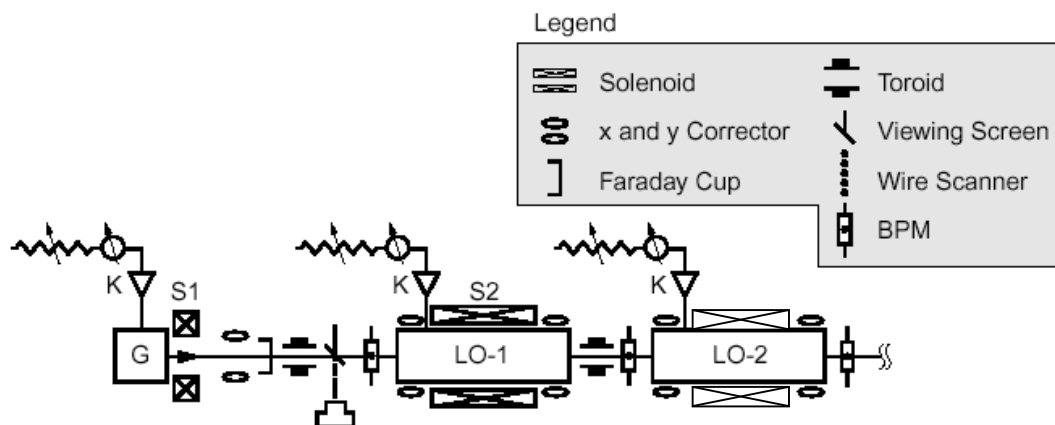
### ***Iniettore***

La produzione del fascio di elettroni a bassa emittanza avviene nei primi 150 MeV, che sono cruciali per la brillantezza finale del fascio. Cio' si realizza mediante un foto-iniettore basato su un cannone a radio-frequenza: questo è dotato di un fotocatodo metallico incorporato eccitato da un laser UV, i cui impulsi sono opportunamente sincronizzati alla radio-frequenza in modo da produrre fotoelettroni quando il campo RF applicato al fotocatodo è prossimo al suo valore di picco.

Il fascio di elettroni così prodotto, ad un'energia di circa 6-7 MeV, viene focalizzato da un solenoide ed iniettato in una struttura accelerante RF del tipo ad onda viaggiante che funge anche da compressore a Radio-Frequenza contribuendo a portare la corrente di picco nel pacchetto da 100 A a 700 A. Una seconda struttura accelerante porta il fascio ad un'energia prossima ai 150 MeV, dove i fenomeni di carica spaziale si affievoliscono, così come la degradazione della brillantezza del fascio ad essi associata.

Le leggi di scala dell'emittanza minima raggiungibile all'uscita dell'iniettore in funzione della frequenza RF indicano una riduzione progressiva di questa al crescere della frequenza: a maggiori frequenze corrispondono campi di picco sul fotocatodo

piu' alti. Cio' consente di controllare al meglio le oscillazioni di plasma nel fascio indotte dagli effetti di carica spaziale, responsabili della crescita di emittanza al di sopra del valore di emittanza termica originato al fotocatodo dai processi di fotoemissione (in sostanza, la temperatura del catodo stesso). Per tale motivo abbiamo scelto la frequenza piu' alta compatibile con la tecnologia odierna, cioe' 2.856 GHz, che permette di raggiungere 120 MV/m di campo di picco sul fotocatodo in condizione operative (e prestazioni di punta di 140). Lo schema dell'iniettore e' quindi quello riportato in Fig. 8.3.



*Fig. 8.3 - Schema dell'iniettore*

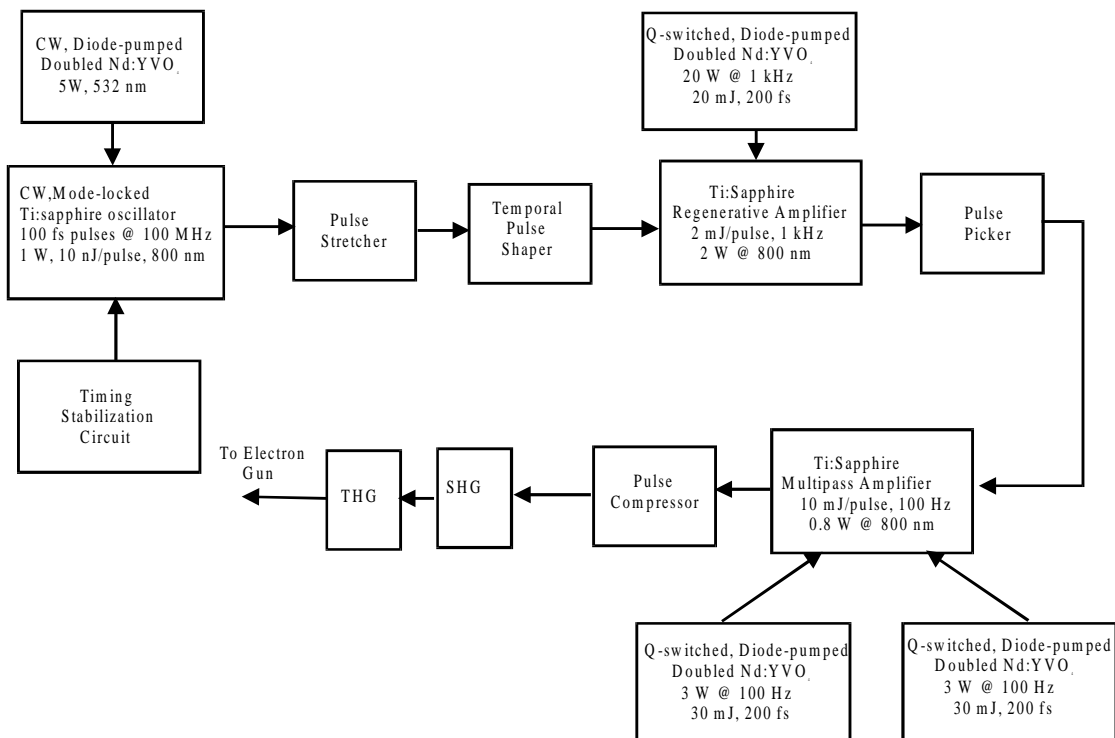
Lo schema proposto di focalizzazione, trasporto e accelerazione del fascio minimizza la crescita di emittanza e produce all'uscita dell'iniettore (150 MeV) un fascio di emittanza circa pari a quella termica.

Le componenti dell'iniettore che richiedono il maggiore sforzo di sviluppo tecnologico sono:

- Il laser, che deve fornire impulsi di radiazione UV @ 266 nm, con durata 10 ps, tempo di salita < 1 ps ed energia 0.5 mJ. Tali requisiti possono essere forniti da un sistema impiegante sia oscillatore che amplificatori a larga banda a Titanio-Zaffiro in regime di mode-locking. Queste componenti del sistema laser sono commercialmente disponibili nel caso di impulso singolo con ripetizione 100 Hz (ad esempio il modello MIRA prodotto dalla Coherent o lo Tsunami prodotto dalla



Spectra Physics). Lo schema del sistema laser è mostrato in Figura 8.4. Per il caso di treni di 35 impulsi distribuiti nei 350 ns di durata temporale dell'impulso RF è in corso uno sviluppo tecnologico degli amplificatori: è ragionevole prevedere il raggiungimento di un'operazione a 10 impulsi in breve tempo (in tal caso l'amplificatore rigenerativo andrà sostituito da un amplificatore multipasso). Le distribuzioni temporale e spaziale uniformi vengono ottenute la prima con una tecnica di formazione degli impulsi che utilizza reticoli ottici dispersivi e una maschera di fase a cristalli liquidi, la seconda con un sistema ottico collocato al termine della linea di trasporto della radiazione laser al cannone. Il formatore degli impulsi consente pertanto di sintetizzare forme arbitrarie per gli impulsi e di variarle facilmente attraverso il controllo di un computer, al fine di ottimizzare l'emittanza del fotocatodo.



**Figura 8.4:** *Schema del sistema laser che pilota il fotocatodo nel cannone RF*

- Il formatore degli impulsi è situato prima degli stadi di amplificazione per due ragioni: (i) al fine di compensare, attraverso l'amplificazione successiva, tutte le perdite indotte dagli elementi ottici del formatore; (ii) mantenere una bassa intensità della radiazione sulle ottiche, evitando così la possibilità di un danneggiamento. Prima di inviare gli impulsi al fotocatodo, occorre sviluppare diversi sistemi per la diagnostica: (i) energia degli impulsi, Joule-meter; (ii) profilo spaziale degli impulsi mediante una telecamera CCD; (iii) misura del profilo temporale degli impulsi, mediante un autocorrelatore; (iv) misura della fase degli impulsi utilizzando tecniche come Frequency Resolved Optical Gating (FROG) o Spectral Interferometry for Direct Electric field Reconstruction (SPIDER) Sistemi laser di questo tipo sono in corso di messa a punto in laboratori di ricerca internazionali [SLAC, ANL, UCLA].
- Il fotocatodo, che deve garantire un'efficienza costante nel tempo  $> 10^{-5}$  con uniformità spaziale di emissione e tempi di risposta  $< 100$  fs ed inoltre operare in campi  $> 100$  MV/m con bassa corrente di buio. Tali prestazioni sono riscontrabili nei catodi metallici del tipo Cu e Mg: recenti misure hanno indicato che i fotocatodi in Cu monocristallino hanno prodotto l'uniformità spaziale richiesta.

- Il cannone RF deve operare fino a 140 MV/m di campo di picco sul fotocatodo al fine di minimizzare gli effetti di carica spaziale. Per raggiungere questo campo elettrico è necessario che il fotocatodo sia incorporato nella parete di rame della cavità RF. Ciò è realizzabile con tecniche tipo “friction bonding”. La cavità deve anche minimizzare le componenti multipolari del campo RF: ciò è garantito da una *slot* di simmetrizzazione localizzata nella prima cella del cannone (di lunghezza pari a 0.3 lunghezze d'onda RF) sulla parete opposta a quella della *slot* di accoppiamento al sistema RF. La seconda cella del cannone è lunga metà della lunghezza d'onda. Tale cannone ha operato fino ad una frequenza di ripetizione di 10 Hz: è in corso lo sviluppo di un sistema analogo, dotato di sistema di raffreddamento potenziato, per arrivare a 100 Hz.

I fenomeni che richiedono un'attività di indagine teorica (con simulazioni) e sperimentale sono: effetti tridimensionali dovuti a non uniformità del fotocatodo e del laser, jitter di fase e di ampiezza, stabilità e ripetibilità del fascio .

Questo programma di R&D verrà svolto nei Laboratori Nazionali di Frascati dell'INFN a partire dal corrente anno.

### ***Struttura Accelerante del Linac***

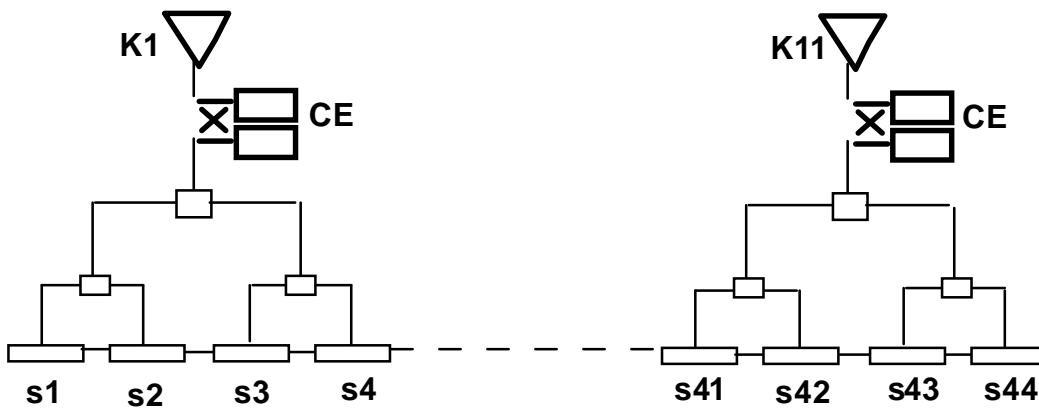
Il fascio di elettroni è costituito da treni di pacchetti aventi lunghezza 350 nsec e corrente media fino a 100 mA. Il numero dei pacchetti all'interno di ciascun treno potrà essere da 1 a 35 in accordo con il programma di sviluppo nel settore dei laser.

Dopo la pre-accelerazione in un iniettore a bassa emittanza da 150 MeV, il fascio viene portato all'energia di 2.5 GeV per mezzo di una serie di sezioni acceleranti ad onda viaggiante (TW) ed è infine estratto per generare la radiazione nell'intervallo  $13 \div 1.5$  nm.

Le sezioni acceleratrici, della lunghezza di 3 metri ciascuna, vengono alimentate da sorgenti a radiofrequenza (klystrons) capaci di erogare potenze di picco fino a 50 MW per 4.5  $\mu$ s alla ripetizione di 100 impulsi al secondo. L'utilizzo di compressori di energia (CE) all'uscita di ogni klystron consente infine di avere a disposizione una potenza massima di picco di circa 160 MW per 0.8  $\mu$ s che, al netto delle perdite per dissipazione lungo le linee di distribuzione, stimate intorno al 10 %, lascia disponibili 144 MW di potenza RF.

La soluzione proposta prevede l'utilizzo di 44 sezioni acceleratrici che in una fase iniziale verranno alimentate al campo accelerante di 18 MV/m da 11 stazioni RF, secondo lo schema mostrato in Fig.8.5, con un guadagno complessivo di 2.37 GeV che, sommati ai 150 MeV del fotoiniettore, porteranno l'energia del fascio a 2.52 GeV. La potenza disponibile permettera' di portare gradualmente il campo fino a 22 MV/m, a parita' di corrente accelerata, per un'energia finale complessiva superiore a 3 GeV, con un margine che consentira' quindi l'accelerazione fuori cresta RF del fascio di particelle, al fine di contribuire alla compressione dei pacchetti. Nella Tab. 8.I sono riassunti i parametri principali di progetto.

Fig. 8.5



Schema RF dell'acceleratore SPARX

**Tab. 8.I – Parametri struttura accelerante del LINAC**

Linac da 2.5 GeV – 2856 MHz	
Gradiente accelerante	18 MV/m
Lunghezza della sezione acceleratrice	3 m
Impedenza di Shunt ( $V^2/P$ )	50 M $\bullet$ /m
Numero di sezioni acceleratrici	44
Frequenza di ripetizione	100 Hz
Potenza di picco dissipata per sezione (1 $\mu$ s)	20 MW
Potenza media dissipata per sezione	2 kW
Lunghezza dell' impulso del treno di pacchetti	350 ns
Numero di pacchetti per impulso	35
Distanza tra pacchetti	10 ns
Carica per pacchetto	1 nC
Corrente in un impulso	100 mA
Potenza di picco al fascio per sezione	5.4 MW
Potenza media al fascio per sezione	190 W
Potenza di picco totale al fascio	237 MW
Potenza totale media al fascio	8.3 kW
Potenza di picco dei Klystron	45 MW
Numero di Klystrons/Modulatori	11
Potenza totale RF dalla rete	500 kW

### *Ottica del fascio di elettroni*

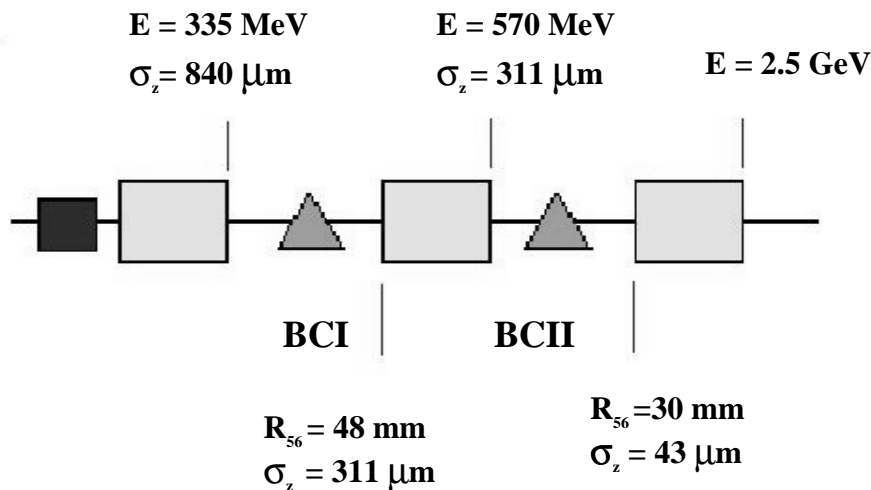
L'ottica dell'acceleratore è costituita dal sistema foceggiante lungo il Linac, dai compressori magnetici, dai canali di estrazione e dai canali di trasporto e matching con gli ondulatori.

Nella fase di accelerazione i pacchetti di elettroni provenienti dall'iniettore debbono essere compressi longitudinalmente in modo da raggiungere correnti

dell'ordine dei 2-3 kA. Sono allo studio due soluzioni per la compressione del bunch fino a raggiungere la lunghezza finale di 40  $\mu\text{m}$  per 1 nC di carica totale:

- a) due compressori magnetici;
- b) un compressore RF con l'ausilio di un compressore magnetico.

In Fig. 8.6 è riportato uno schema per la soluzione a). Le sezioni acceleranti sono raggruppate in 3 parti (L1 fino a 335 MeV, L2 fino a 570 MeV, L3 fino all'energia finale di 2.5 GeV), intervallate da due sezioni di compressione BCI e BCII. Il bunch viene inizialmente compresso accelerando con una fase di RF fuori cresta e introducendo una dispersione in energia correlata lungo il bunch. Questo processo è seguito da due sezioni curvanti (BCI e BCII) con una dipendenza lineare della lunghezza della traiettoria  $\Delta l$  dall'energia  $\Delta p$  della particella, espressa dal parametro  $R_{56}$ , che riducono la lunghezza del bunch da 845  $\mu\text{m}$  a 43  $\mu\text{m}$ . I campi dovuti alla radiazione coerente di sincrotrone (CSR), che agiscono su bunch molto corti nei dipoli, possono portare ad un aumento di emittanza trasversa nei compressori magnetici.



*Fig. 8.6 – Schema di massima per la soluzione a) con due compressori magnetici*

Fra il primo modulo accelerante e il primo compressore è inserita un cavità in 3<sup>a</sup> armonica, al fine di ridurre la distorsione dello spazio delle fasi longitudinale introdotta dalla non linearità del campo accelerante. Un tripletto di quadrupoli prima della chicane permette di focheggiare le funzioni ottiche negli ultimi due dipoli del

compressore per contenere l'aumento dell'emittanza dovuto alla radiazione coerente di sincrotrone (CSR). A valle del compressore BCI è prevista una sezione di diagnostica per la misura dell'emittanza, ED1.

La soluzione b) prevede che la compressione ad RF venga effettuata nell'iniettore e ci sia una sola sezione di compressione magnetica a 990 MeV che riduce la lunghezza del bunch da 120  $\mu\text{m}$  a 43  $\mu\text{m}$ . Questa soluzione, avendo un solo compressore magnetico, presenta il vantaggio di avere una degradazione dell'emittanza dovuta alla compressione molto minore. La fattibilità del compressore a RF sarà oggetto di un programma di R&D.

In Tabella 8.II sono presentati i parametri dei compressori relativi alle due soluzioni, con: E = energia alla quale viene effettuata la compressione,  $\sigma_i$  e  $\sigma_f$  = lunghezza del bunch all'inizio e alla fine del compressore,  $L_{\text{tot}}$  = lunghezza totale del compressore,  $\theta_B$  = angolo di curvatura del singolo dipolo,  $\sigma_\delta^{\text{CSR}}$  = dispersione relativa in energia dovuta alla CSR,  $\Delta\varepsilon_\delta^{\text{CSR}}/\varepsilon_0$  = degradazione dell'emittanza dovuta alla CSR.

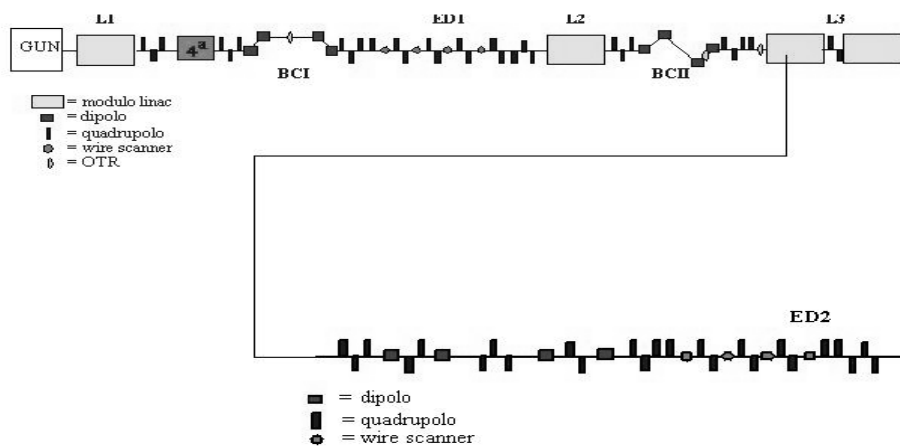
**Tab. 8.II - Parametri dei compressori**

Type	E GeV	$R_{56}$ mm	$\sigma_{zi}$ $\mu\text{m}$	$\sigma_{zf}$ $\mu\text{m}$	$L_{\text{tot}}$ m	$\theta_B$ deg	$\sigma_\delta^{\text{CSR}}$ $10^{-4}$	$\Delta\varepsilon_\delta^{\text{CSR}}/\varepsilon_0$ %
BCI a	.335	48.5	845	311	6	6.7	1.3	3.4
BCII a	.572	30.5	311	43	10	4	2.3	24
BCI b	.991	30.5	120	43	10	4	1.3	14

I numeri riportati nelle due ultime colonne sono stati calcolati con formule analitiche approssimate. Per calcolare una distribuzione realistica del fascio all'ingresso dell'ondulatore è necessario simulare le traiettorie degli elettroni lungo tutto l'acceleratore. Occorre tener conto della distribuzione non gaussiana delle particelle e di effetti non lineari come carica spaziale, CSR e campi scia. Questo lavoro è attualmente in fase di svolgimento.

Per il trasporto del fascio di elettroni fino all'ondulatore è prevista una linea di trasferimento DL (Dog Leg) con caratteristiche tali da permettere il matching delle funzioni ottiche fra il fascio in uscita dal Linac e l'ondulatore

senza alterare la lunghezza del bunch. Inoltre è necessaria una sezione di diagnostica ED2 per la misura dell'emittanza trasversa, dell'energia e della dispersione in energia prima dell'ingresso nell'ondulatore. In figura mostriamo uno schema della soluzione a) dall'iniettore all'ondulatore. In entrambe le soluzioni la configurazione a "s" della chicane del compressore ad alta energia è pensata al fine di limitare la crescita di emittanza orizzontale causata dalla CSR.



**Fig. 8.7 - Schema di massima dell'ottica dall'iniettore all'ondulatore (soluzione a).**

### **Diagnostica e Controllo**

La diagnostica del fascio di elettroni può essere suddivisa in tre parti, con obiettivi e tecniche diversi: l' iniettore, il **hac** e i compressori magnetici.

Per quanto riguarda l' iniettore, il problema principale è la generazione e mantenimento della bassa emittanza e la compressione RF. Sono necessarie misure di emittanza, lunghezza, posizione e corrente del pacchetto.

La misura di emittanza all'uscita del cannone può essere effettuata con la tecnica del Pepper-pot, già sperimentata su TTF, utilizzando targhette ad emissione di Radiazione di Transizione o targhette a fluorescenza con alta risoluzione spaziale (cristalli YAG) accoppiate a telecamere intensificate. La misura di lunghezza, prima, od in assenza, della compressione, può essere effettuata con una Streak Camera commerciale ed un radiatore Cherenkov. Dopo la compressione si può utilizzare la misura dello spettro di emissione della Radiazione di Transizione Coerente, tecnica



ormai ben collaudata. La carica emessa dal cannone si misura con una Faraday Cup, mentre la misura della corrente lungo il linac richiede l'uso di toroidi a larga banda.

Lungo il linac il fascio deve essere mantenuto al meglio sull'asse per ridurre gli effetti dei campi scia. La posizione del fascio si deve misurare periodicamente e possono essere usati diversi strumenti, con risoluzioni diverse, quali strip-line o monitor a radiofrequenza, avendo cura, nel loro disegno, di ridurre al minimo la creazione di campi di scia.

Il problema è più complesso per i compressori: bisogna controllare sia la capacità di compressione che la variazione di emittanza da essi introdotta. Anche in questo caso sono necessarie misure di emittanza e lunghezza del bunch, di posizione e di corrente del fascio. A questo livello la lunghezza del bunch può essere misurata solo con l'analisi spettrale della radiazione coerente, mentre per la misura di emittanza può essere usata la più standard tecnica dello scanning con un quadrupolo. La radiazione di transizione, raccolta da telecamere intensificate, permette la risoluzione necessaria.

A valle del linac tutti i parametri del fascio devono essere misurati prima del canale di matching con l'ondulatore. Un canale di by-pass, che permetta di evitare il passaggio nell'ondulatore stesso, è necessario, sia per il commissioning del fascio che per motivi di sicurezza. A valle dell'ondulatore, nel canale di trasporto del fascio verso il dump, verrà effettuata una misura di spread di energia ad alta risoluzione.

### ***Elettronica***

L'elettronica deve prevedere un sistema di timing con il compito di assicurare che tutte le parti della macchina lavorino in modo sincronizzato: iniettore e gun, cavità e deflettori RF, differenti sistemi per la diagnostica, magneti pulsati. A tale scopo è necessario produrre e distribuire una serie di segnali di frequenza differente e di fase opportunamente correlata. Il sistema di timing può essere disegnato per generare segnali a frequenze fino a 3 GHz. A bassa frequenza può essere usata componentistica commerciale, mentre ad alta frequenza occorre progettare componenti a bassissimo jitter. I sistemi di feedback includono i pick-ups ed i dispositivi di attuazione specifici.

Occorre prevedere la strumentazione per la diagnostica del fascio: oscilloscopi, sintetizzatori RF, generatori di segnali impulsivi, generatori di ritardi programmabili, analizzatori di spettro, analizzatori di rete. Sono infine necessari connettori e cavi con

adeguata banda passante per il prelievo dei segnali dai pick-ups, alloggiamenti per i cavi, rack per l'installazione dei crates e delle apparecchiature, alimentatori in continua a bassa tensione.

### ***Vuoto***

Il sistema da vuoto, nel suo complesso, può essere suddiviso in tre parti, ciascuna con requisiti e caratteristiche proprie. Il fotoiniettore è un componente critico la cui pressione di lavoro dovrà essere di circa  $10^{-10}$  mbar. Gli altri componenti dell'iniettore possono lavorare ad una pressione di circa  $10^{-9}$  mbar. Il sistema comprende le pompe, le valvole di sezionamento e di servizio, la diagnostica (vacuometri e spettrometri di massa) e la camera da vuoto. Il sistema da vuoto per il linac è sostanzialmente proporzionale alla sua lunghezza, e quindi all'energia. Per ogni GeV il sistema da vuoto deve garantire una pressione di esercizio di circa  $10^{-9}$  mbar. Considerando una macchina da 1 GeV, tale valore è raggiungibile per mezzo di 15 stazioni di pompaggio (100 l/s circa) intercalate alle sezioni acceleratrici e 21 pompe (50 l/s circa) installate lungo le guide d'onda e sui compressori di energia. Valvole di sezionamento (6), di servizio (5) e la diagnostica da vuoto completano il sistema. Un sistema di canali di trasporto sotto vuoto (circa  $10^{-8}$  mbar) permetterà di collegare tra loro le varie parti dell'acceleratore. Essi sono costituiti essenzialmente da un tubo in acciaio del diametro di circa 40 mm provvisto di stazioni di pompaggio (50 l/s circa) ogni 5 metri. Lungo i canali di trasporto, come nel resto della macchina, saranno previste valvole di sezionamento e di servizio oltre alla diagnostica da vuoto.

### ***Stima dei costi del Linac***

In Tab. 8.III vengono riportati i costi stimati in M•. Tali costi non includono il costo del personale e delle infrastrutture.

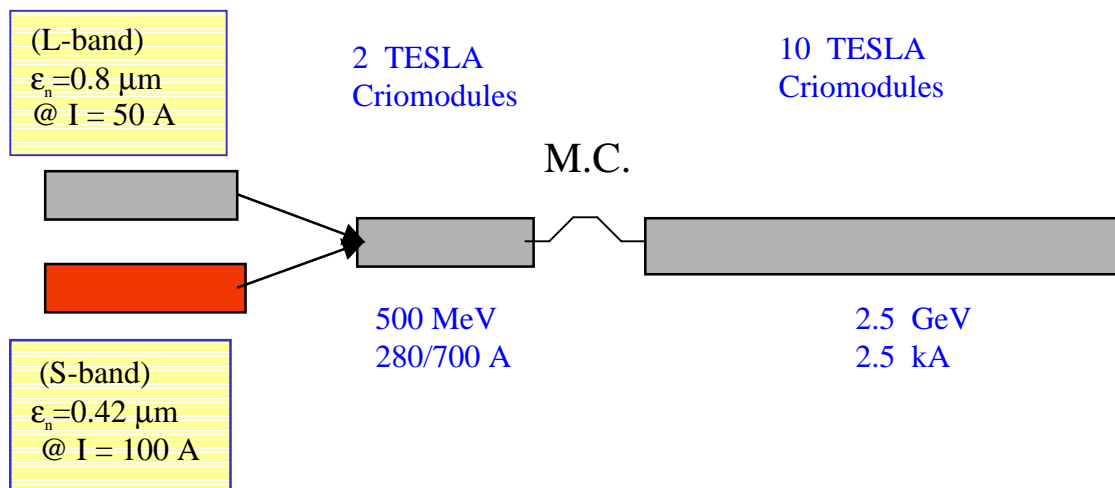
**Tab. 8.III – Costi del LINAC**

	Costo	IVA	Contingenza
Iniettore	5	1	
Linac da 2.5 GeV	20	4	
Ottica, vuoto, diagnostica, elettronica	6	1.2	
TOTALE ACCELERATORE	31	6.2	5.8

***Soluzione basata su un linac super-conduttore***

L'acceleratore SPARX puo' utilizzare anche la tecnologia superconduttrice che offre alcuni vantaggi rispetto a quella a temperatura ambiente. I piu' evidenti sono una migliore stabilita' in energia e un piu' alto ciclo di utilizzazione (duty-cycle) del fascio. D'altra parte, un acceleratore superconduttore presenta costi piu' elevati dovuti principalmente alla presenza dei sistemi di criogenia.

L'analisi di tale soluzione, confermata anche dall'esperienza maturata presso il laboratorio DESY in Germania, mostra che l' iniettore a 1.3 GHz, ottimizzato fino a 150 MeV, presenta un fascio in uscita di minore qualità rispetto al caso "normal conducting". Le simulazioni con il codice HOMDYN ottimizzate ad una energia di 150 MeV forniscono valori di  $\epsilon_n=0.8 \mu\text{m}$  e  $I = 50 \text{ A}$ , a fronte di  $\epsilon_n=0.4 \mu\text{m}$  e  $I = 100 \text{ A}$  della soluzione "calda". Con tali valori all'uscita dell' iniettore si ottengono facilmente a 2.5 GeV fasci con la qualità necessaria alla generazione di radiazione SASE a 13 nm. Tuttavia l'ottimizzazione del sistema per il caso di radiazione a 1.5 nm risulta meno agevole rispetto alla soluzione calda. Per tali motivi si ritiene che lo schema superconduttore debba prevedere due iniettori (caldo e freddo), che tra l' altro aumentano la flessibilità della sorgente, in grado di assicurare elevata corrente di picco ed elevata corrente media. La Fig. 8.8 mostra uno schema di tale soluzione.

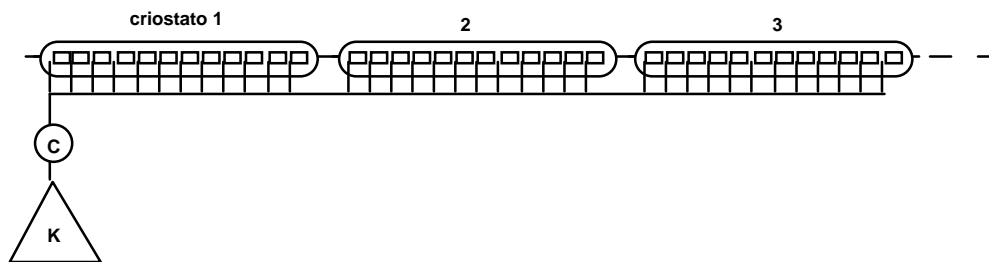


*Fig. 8.8 – Struttura LINAC superconduttrice a due iniettori*

Un linac superconduttore proponibile per SPARX puo' ripercorrere le linee del progetto TESLA che opera alla temperatura di 2 Kelvin. Il Linac è quindi costituito da una serie di criostati comprendenti ciascuno 12 cavita' in Niobio da 9 celle, operanti a 1300 MHz. Considerando un gradiente accelerante di 17 MV/m, valore preso come riferimento nel progetto TESLA-FEL, una struttura da 2.5 GeV superconduttrice richiede 12 criostati, per un totale di 144 cavità.

La struttura del fascio è la stessa del progetto FEL di TESLA che prevede treni da 1 ms costituiti da 11500 pacchetti e corrente media di 11.5 mA. Per contenere i costi del sistema criogenico, la frequenza di ripetizione degli impulsi e' inizialmente limitata a 5 Hz che riduce a 152 W la potenza criogenica a 2 K. Sviluppi successivi possono portare verso ripetizioni piu' alte fino a prevedere un funzionamento delle cavita' superconduttrici in onda continua.

Klystrons ad alta efficienza da 10 MW di picco alla frequenza di 1300 MHz sono già stati sviluppati dall'industria nell'ambito del progetto TESLA. Quattro sorgenti di potenza, una per ogni tre criostati, sono necessarie per alimentare l'acceleratore superconduttore da 2.5 GeV. La figura 8.9 riporta schematicamente un quarto della struttura RF del sistema e la Tab. 8.IV riporta i parametri del sistema.



**Fig 8.9 – Schema RF dell’acceleratore superconduttore**

**Tab. 8.IV – Parametri del sistema LINAC superconduttore**

SPARX superconduttore 2.5 GeV – 1300 MHz	
Gradiente accelerante	17 MV/m
Lunghezza attiva della cavità	1.038 m
Fattore di merito $Q_0$ della cavità	$1 \times 10^{10}$
Numero di Crio-moduli	12
Numero di cavità (1300 MHz)	144
Frequenza di ripetizione	5 Hz
Lunghezza dell'impulso del treno di pacchetti di elettroni	11 ms
Numero di pacchetti per impulso	11500
Distanza tra pacchetti	87 ns
Carica del pacchetto	1 nC
Corrente per impulso	11.5 mA
Potenza di picco al fascio	200 kW
Potenza totale di picco al fascio	28.8 MW
Potenza media totale al fascio	144 kW
Numero di Klystrons/Modulatori	4
Potenza di picco del Klystron	9.6 MW
Accoppiamento tra Cavità/Generatore ( $\beta$ )	6900
$Q_{ext}$ della cavità	$1.45 \times 10^6$
Larghezza di banda del sistema Generatore/Cavità	900 Hz
Tempo di riempimento della Cavità	0.5 ms

Lunghezza dell'impulso RF	1.5 ms
Potenza totale dissipata RF	32 W
Perdite statiche complessive deicriomoduli	120 W (10W x 12)
Potenza totale di criogenia (2 K)	152 W
Potenza criogenica totale dalla rete ( $\eta = 1\%$ )	152 kW
Potenza RF totale dalla rete	330 kW

Il costo del Linac superconduttore da 2.5 GeV è stato calcolato in 40 M€ (escluso IVA) che comprendono il sistema di criogenia, stimato intorno a 5 M€ nella prima fase a basso duty-cycle, e il sistema d'iniezione superconduttore.

- [1] L. Serafini, M. Ferrario, "Velocity Bunching in Photoinjector", Proc of 18th ICFA Beam Dynamics Workshop "Physics of and Science with X-ray FELs" Arcidosso 2000, LNF-00-036
- [2] L. Serafini, J. B. Rosenzweig, "Envelope analysis of intense relativistic quasilaminar beams in rf photoinjectors: a theory of emittance compensation", Phys. Rev. E 55 (1997) 7565.
- [3] M. Ferrario, J. E. Clendenin, D. T. Palmer, J. B. Rosenzweig, L. Serafini, "HOMDYN Study For The LCLS RF Photo-Injector", Proc. of the 2nd ICFA Adv. Acc. Workshop on "The Physics of High Brightness Beams", UCLA, Nov., 1999.
- [4] TESLA TDR e LCLS Design Study Report.
- [5] R.A. Crowell et al- Laser System for a subpicosecond electron linac-Proc.Linac Conference , Chicago(1998)103- 105.
- [6] R.Boni, F.Marcellini, F.Sannibale, M.Vescovi, G.Vignola, " DAFNE Linac Commissioning Results", DAFNE Tech. Note, BM-2, 1997.
- [7] A.Drago, G.Di Pirro, A.Ghigo, F.Sannibale, M.Serio, "The Dafne Timing System", 5th European Particle Accelerator Conference (EPAC96), Sitges, June 10-14 1996. LNF-96/033(P).
- [8] G.Di Pirro, A. Drago, A.Gallo, A. Ghigo, F. Sannibale, M. Serio, "Implementation and Performance of the Dafne Timing System", 6th European Particle Accelerator Conference (EPAC 98), Stockholm, Sweden, 22-26 June 1998, p.1661, LNF-98/023 (P).
- [9] M.Castellano et al., "OTR Measurements for the TTF Commissioning", Proceedings of the 3rd DIPAC Workshop, LNF-97/048 (IR), 195, (1997).
- [10] M.Castellano et al., "6-D Electron Beam Characterization Using Optical Transition Radiation and Coherent Diffraction Radiation", [9] M.Castellano et al., "OTR Measurements for the TTF Commissioning", Proceedings of DIPAC-2001, ESRF, Grenoble 46, (2002).

## 8.2 SISTEMA FEL SASE

### 8.2.1 CANALE DI TRASPORTO E ONDULATORI

#### *Canale di trasporto*

Con il termine canale di trasporto designiamo tutto il complesso di elementi magnetici necessari per trasportare il fascio di elettroni dalla uscita del Linac all'ingresso degli ondulatori e da qui fino al pozzo di spegnimento.

In questa sezione discuteremo una possibile struttura di canale e descriveremo le due parti separatamente.

#### A) TRATTO LINAC-ONDULATORI

Il trasporto del fascio di elettroni dall'uscita del Linac agli ondulatori richiede un doppio sistema di deflessione del fascio, che ne consenta l'allontanamento ed il successivo riallineamento rispetto all'asse dell'ondulatore. In relazione a questo punto è stato necessario valutare gli effetti della emissione di luce di sincrotrone coerente che inducono una crescita di dispersione di energia e di emittanza del fascio medesimo. Assumendo come fattori di tolleranza un aumento della dispersione di energia relativa non superiore a  $10^{-4}$  e di emittanza non superiore a  $5 \times 10^{-4}$ , si può stimare un angolo totale di deflessione di  $4^\circ$ , che può essere ripartito in due deflessione da  $2^\circ$  necessarie per le azioni di deflessione e di allineamento prima descritte.

La struttura presa in considerazione è quella mostrata in Fig. 8.9 e consiste in un primo tratto di deflessione realizzato con un sistema acromatico, un secondo tratto di trasporto di tipo FODO la cui maglia elementare viene ripetuta più volte e un ultimo tratto identico a quello iniziale per riportare il fascio in asse, infine un doppietto di quadrupoli garantisce il raccordo con il trasporto all'interno dell'ondulatore.

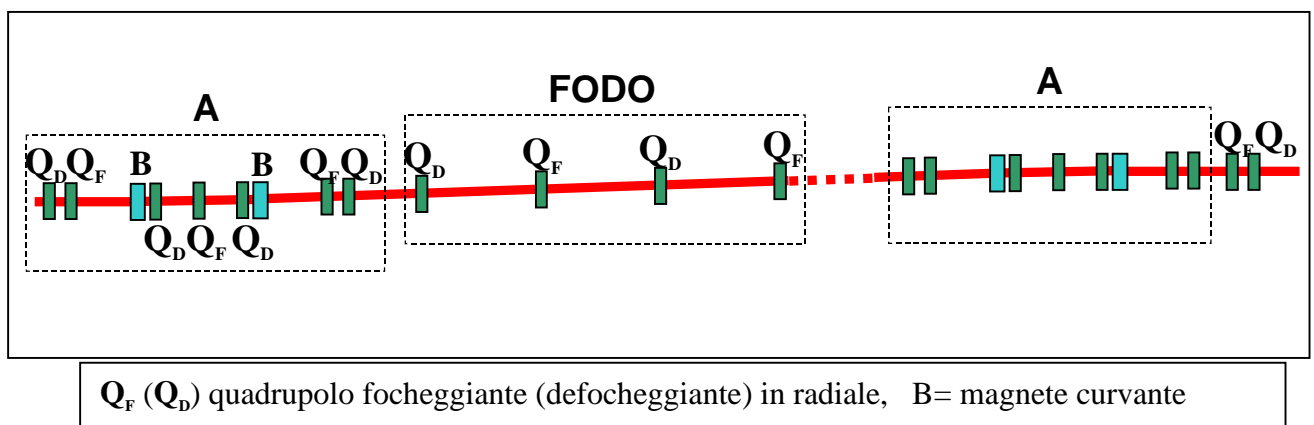


Fig. 8.9 - Singola maglia del canale di trasporto sezione linac-ondulatori

#### B) PROPAGAZIONE ALL'INTERNO DELL'ONDULATORE

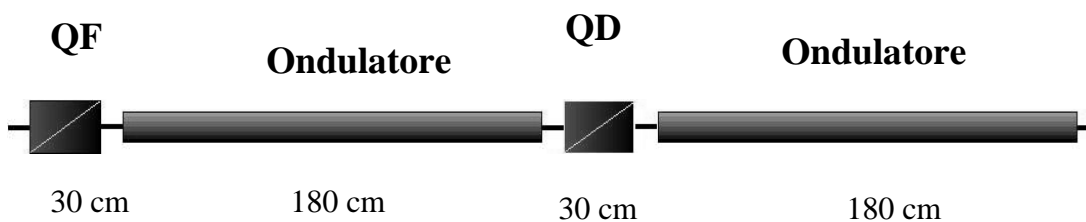
Il progetto del canale è estremamente delicato, perché deve rispondere a vari requisiti, in primis quello di una appropriata focalizzazione del fascio di elettroni.

Il fascio di elettroni deve infatti conservare una sezione trasversa tale che effetti, come allargamenti in omogenei e diffrattivi, che inducono una diminuzione del guadagno del sistema e pertanto aumentano la lunghezza di saturazione, pesino il meno possibile.

Una analisi preliminare di ottimizzazione ha mostrato che una sezione media trasversa tale da garantire le necessità di cui sopra è data da  $3\pi \times 10^{-9} \text{ m}^2$  per entrambe le operazioni a 13.5 e 1.5 nm.

Una delle soluzioni considerate per la realizzazione pratica di tale struttura di trasporto è quella schematizzata in figura 8.10, dove viene mostrata una “maglia” FODO dell’intero sistema, costituita come segue

- i) tratto libero (lunghezza 9 cm)
- ii) tre sezioni di ondulatori (lunghezza 180 cm)
- iii) tratto libero (lunghezza 9 cm)
- iv) un quadrupolo focheggiante o defocheggiante (lunghezza 30 cm)



**Fig. 8.10 - Singola maglia del canale di trasporto sezione linac-ondulatori**

La maglia viene ripetuta per 8 volte (nel caso dell’operazione a 1.5 nm), in modo da garantire il corretto trasporto degli elettroni fino alla zona di saturazione.

Tale struttura di canale assicura notevoli vantaggi, infatti il sistema è flessibile sia per quanto concerne la possibilità di inserire elementi diagnostici, sia per quanto concerne una certa indipendenza della lunghezza totale del sistema dalle fluttuazioni della sezione del fasci di elettroni rispetto al valore medio fissato.

La soluzione FODO è stata messa a confronto con altre possibili, in particolare è stata studiata una struttura di trasporto del fascio che prevede 2 sezioni di ondulatori da 1.8 m, intervallate da doppietti di quadrupoli. Tale configurazione offre il vantaggio di un ingombro totale minore, ma rende il sistema meno agevole dal punto di vista di posizionamento delle diagnostiche.



Analisi successive più dettagliate concernenti la criticità del canale rispetto ai parametri di ingresso, a errori di alimentazione dei quadrupoli e ad errori di magnetizzazione e di allineamento offriranno dei criteri di scelta più appropriati.

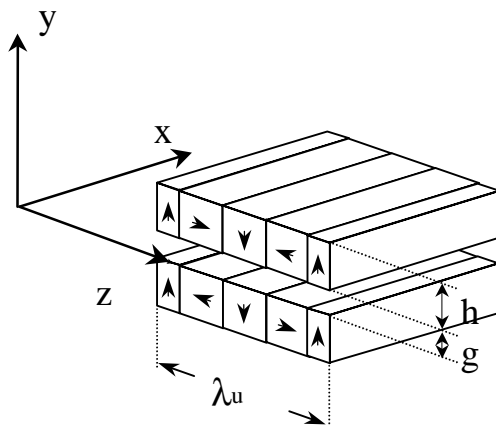
### ***Ondulatori***

Come già più volte affermato l'ondulatore è il nucleo centrale del sistema, là dove avviene la interazione FEL-SASE. Esso è una struttura magnetica, caratterizzata da un campo con oscillazione sinusoidale nella direzione longitudinale, che ha il compito di deviare il fascio di elettroni dalla iniziale traiettoria longitudinale, obbligandolo ad una traiettoria ondulata, determinata dal periodo di oscillazione e dal campo di picco. La lunghezza d'onda di emissione dipende dal periodo dell'ondulatore, dal campo e dall'energia del fascio di elettroni.

L'ondulatore può essere costruito seguendo tecnologie diverse che permettono soluzioni diverse.

Nell'ambito del presente progetto, si è scelta la tecnologia dei magneti permanenti Neodimio Ferro Boro (NdFeBo), per la sua ormai acclarata maturità, per la vasta esperienza acquisita nel campo, per la intrinseca flessibilità e semplicità di calcolo e di progetto.

Un tipico esempio di assemblaggio di magneti permanenti, per la realizzazione di un singolo periodo di ondulatore, è mostrata in Fig. 8.11.



**Fig. 8.11 - Ondulatori a magneti permanenti configurati in modo halfbach.**

In tale struttura il campo sull'asse è proporzionale al campo residuo dei magneti e diminuisce esponenzialmente all'aumentare del rapporto gap/periodo. Dove per gap si intende la distanza g tra le due superfici magnetiche affacciate (si veda Fig. 8.11).

Una volta fissata l'energia del fascio di elettroni e la lunghezza d'onda centrale di operazione, i parametri dell'ondulatore sono praticamente fissati. Il magnete viene inoltre disegnato in maniera tale da garantire una accordabilità residua in funzione del campo sull'asse.

## 8.2.2 TRASPORTO E DIAGNOSTICHE FASCIO X

### Canale di trasporto fotoni

Nella regione spettrale di interesse (raggi X molli compresi tra 1.5nm e 13.5nm) la lunghezza di Rayleigh comporta la necessità di lunghi canali di trasporto per la radiazione per accedere alla zona del "Far Field". Benché analoghe strutture vengano già realizzate accanto alle sorgenti di luce di sincrotrone, nel caso della sorgente FEL in esame, la brillantezza di tale fascio di luce è di svariati ordini di grandezza più elevata. Una possibile tecnica consiste nel realizzare una struttura in cui la radiazione è sottoposta ad una serie di riflessioni multiple. Per ottenere una riflessione accettabile occorre giungere sugli specchi con un angolo di incidenza radente, il che implica che per poter deviare un fascio di raggi X di un angolo elevato, occorre fargli compiere un gran numero di riflessioni con una conseguente necessità di ampi spazi disponibili (vedi cap.2 e cap.8). Per quanto riguarda la manipolazione della radiazione, la scelta sulle ottiche è limitata. Come ottiche di foceggiamento si possono usare sistemi in riflessione con specchi di opportune curvature con i limiti sugli specchi deducibili da quanto già esposto, oppure si possono usare ottiche diffrattive, opportunamente realizzate, quali ad esempio le "zone-plates". Poiché queste lenti sono realizzate su di una membrana, il loro utilizzo è limitato a fotoni con energia superiore a circa 200 eV. Un altro elemento limitativo per l'uso di queste ottiche diffrattive è il fatto che esse presentano una larghezza di banda di circa lo 0.2%, il che implica nuovamente la necessità di disporre di una vasta gamma di lenti per poter coprire il campo di accordabilità del FEL. Una volta però che la "zone plate" è disegnata per la frequenza fondamentale, essa può essere utilizzata per ogni armonica della fondamentale; questo aspetto le rende molto utili per un FEL-SASE operante anche ad armoniche superiori.

### Diagnostiche fotoni

Per una completa caratterizzazione della radiazione prodotta dal FEL in regime SASE è necessario analizzare il segnale durante la sua crescita nell'ondulatore, nonché misurare la durata dell'impulso di radiazione. Per ciò che riguarda i rivelatori sono stati sviluppati fotodiodi al silicio con caratteristiche ottimizzate nella regione spettrale di nostro interesse (50-1000 eV). In tale regione è possibile ottenere una responsività pressoché costante intorno ad un valore di 0.2 A/W. Tali rivelatori hanno una risposta direttamente proporzionale all'energia che su di essi si deposita. La loro massima velocità di risposta è di circa 50 ps, il che implica la necessità di un'analisi di autocorrelazione per la determinazione della durata dell'impulso di radiazione FEL che sarà inferiore ad 1 ps. Per poter ottenere una buona immagine della distribuzione spaziale della intensità della radiazione FEL, esistono altri due tipi di rivelatori che possono essere usati: il primo è la

matrice di CCD, mentre il secondo è la pellicola fotografica. Entrambi questi due dispositivi necessitano di una calibrazione nel caso in cui si voglia ottenere un'accurata risposta dell'intensità dei fotoni X incidenti, ma il loro vantaggio risiede nell'altissima sensibilità e nella loro elevata risoluzione spaziale (da 1 a 10  $\mu\text{m}$  per le pellicole fotografiche e da 10 a 20  $\mu\text{m}$  per le CCD). Per questi due rivelatori la risposta spettrale è adeguata alle esigenze del FEL-SASE operante tra 50-1000 eV.

### 8.2.3 COSTI

I costi (in M€) relativi al sistema FEL SASE (canali di trasporto e diagnostiche per elettroni e fotoni, ondulatori) sono riportati in Tab. 8.V

**Tab. 8.V – Costi sistema FEL SASE costi in M€**

	costo	IVA	contingenza
Ondulatori 1: $L = 20 \text{ m}$ , $\lambda_U = 5 \text{ cm}$ (completo di camera da vuoto, controlli e diagnostiche)	3		
Ondulatore 2: $L = 30 \text{ m}$ , $\lambda_U = 3 \text{ cm}$ (completo di camera da vuoto, controlli e diagnostiche)	4		
Canale di trasporto e diagnostiche fascio di fotoni	0.6		
Sala controllo FEL	0.7		
<b>TOTALE SASE FEL</b>	<b>8.3</b>	<b>1.7</b>	<b>2</b>

## 9. IL SITO

### 9.1 DESCRIZIONE DEL SITO

Per la realizzazione della sorgente SPARX oggetto della presente proposta si è individuata l'area di proprietà dell'Università di Roma "Tor Vergata", compresa tra la nuova Facoltà di Scienze MFN e L'Area Ricerca del CNR di Via del Fosso del Cavaliere (vedi Allegato B). Sulla pianta in Allegato B è evidenziata la direttrice di circa 1300 m lungo la quale si sviluppa SPARX nelle sue due fasi (quella relativa al presente bando e l'eventuale estensione a alla regione dei raggi X duri).

Alternativamente è possibile utilizzare un'area presso i Laboratori Nazionali di Frascati dell'INFN, dove è disponibile un'area (che si estende per una lunghezza di circa 400m) che permette la realizzazione della prima fase del progetto SPARX (cioè della sorgente nella regione dei raggi X molli (13.5-1.5 nm)). In questo capitolo verrà esaminato in dettaglio il caso relativo al sito nell'Università di Roma "Tor Vergata".

Come è stato descritto nelle altre sezioni del presente documento, ed accennato all'inizio di questo capitolo, il progetto si articola in due fasi. Nella fase 1 (finanziata da questo bando FIRB) si intende realizzare un linac da 2.5 GeV con un iniettore a bassa emittanza e basso spread di energia da 150 MeV e almeno 2 linee di luce, utilizzando due ondulatori di circa 30 m di lunghezza per operare nella regione spettrale dei nm. La fase 2 (predisposta come futura opportunità, ma non finanziata nell'ambito dell'attuale bando FIRB) prevede di portare l'energia della macchina ad almeno 10 GeV e la costruzione di ulteriori linee di luce utilizzando ondulatori di 70-80 m di lunghezza per il raggiungimento della regione spettrale dell'Angstrom.

Per dimensionare l'acceleratore si è assunto un gradiente accelerante medio di 15 MeV/m sia nel caso di linac con celle a temperatura ambiente (NC) che con celle superconduttrici (SC). L'ingombro trasverso della macchina si stima essere di 0.5 m nel caso NC e 1.5 m nel caso SC.

Il bunker che alloggerà il Linac è stato quindi dimensionato con i seguenti criteri:

L'iniettore del Linac è collocato nella zona indicata come quota (0 M) in Allegato B.

La lunghezza della sezione di bunker necessaria per l'operazione a 2.5 GeV si può stimare di 210 m, così suddivisi:

- a) 5 m dall'inizio del bunker per il posizionamento dell'iniettore,
- b) 20 m di lunghezza per l'iniettore,
- c) 25 m dall'iniettore alle prime sezioni del linac,
- d) 160 m di lunghezza del linac per raggiungere i 2.5 GeV

Nell'All. C sono riportate le sezioni longitudinale e trasversa e la relativa pianta del tratto di bunker compreso tra 0 e 320 m. La sezione trasversa di tipo 1, corrispondente al primo tratto di 210 m, è divisa in due parti, per l'alloggiamento del Linac e dei servizi (alimentazioni RF) rispettivamente. La sezione del bunker viene modificata nella zona di interazione FEL (sezione tipo 2) per permettere l'installazione di 2 ondulatori posizionati in modo simmetrico rispetto all'asse del Linac.

Nel punto di uscita del fascio da 2.5 GeV, un sistema di deflessione magnetica invia il fascio di elettroni agli ondulatori UM1 e UM2. Dopo 20 m dalla fine degli ondulatori la sezione del bunker ritorna quella di tipo 1. Come mostrato nell' All. D, da questo punto si dipartono due tunnel laterali che permettono il trasporto della radiazione emessa nel processo FEL SASE alle sale sperimentali a 86 m di distanza. In queste sale verranno installate almeno due stazioni sperimentali per le linee di luce di UM1 e UM2. Per quanto riguarda le future implementazioni previste dalla fase 2, alla distanza di 735 m dall'inizio del bunker, corrispondente ad una energia del fascio di elettroni di 10 GeV, la sezione ritorna ad essere quella di tipo 2 per permettere il posizionamento degli ondulatori per l'operazione FEL SASE nella regione dell'Angstrom (All.E). Dai 1000 ai 1350 m di distanza dall'inizio del bunker si ritrova la stessa configurazione descritta nell'All. D per permettere il trasporto dei fasci di radiazione alle sale sperimentali (All. F). In queste sale verranno installate almeno due stazioni sperimentali per due ulteriori linee di luce. L'edificio ospitante le sale sperimentali per l'operazione con il fascio da 2.5 GeV è descritto negli Allegati G-H-I-J-K. L'All.G descrive in modo particolareggiato la pianta del piano del laboratorio sperimentale alla quota del fascio di radiazione mentre l'All. H descrive la pianta particolareggiata dei laboratori al piano superiore. La pianta dei laboratori di supporto è mostrata nell'All. I, mentre negli All. J,K sono riportate le sezioni del laboratorio sperimentale

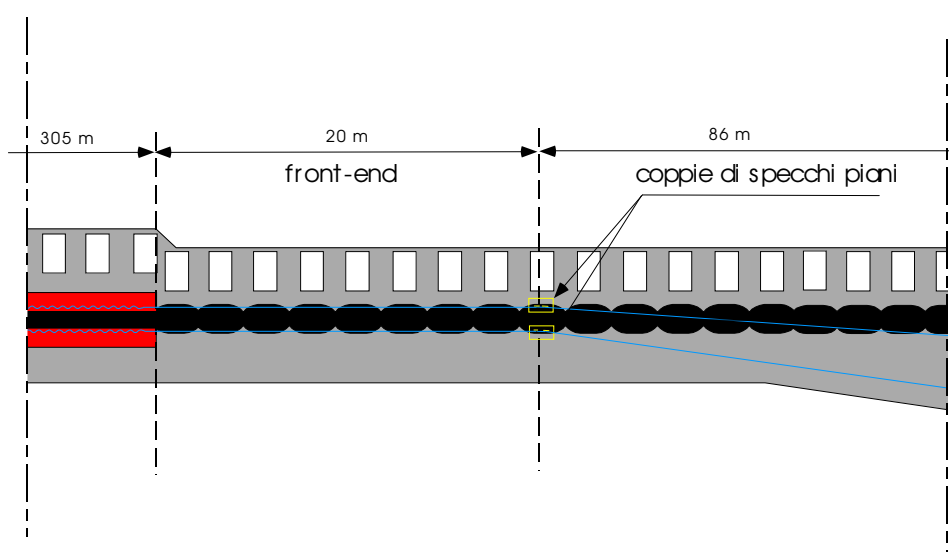
Lungo il percorso del bunker ed in corrispondenza delle sale sperimentali sono previsti i pozzi di accesso per l'installazione dei componenti e le vie di fuga.

### ***Laboratorio per l'utilizzazione della radiazione di SPARX nella fase 1***

A titolo esemplificativo riportiamo di seguito il dettaglio della soluzione proposta per l' area sperimentale schematicamente indicata nell'All. D.

Gli ondulatori terminano a 305 m dall' inizio del bunker; a partire da questo punto sono previsti 20 metri dove saranno collocati diversi dispositivi: i due pozzetti di spegnimento, gli assorbitori di potenza, le valvole di sezionamento, i "beam stopper" della radiazione gamma, i "beam shutter" dei fasci laser, i "pin-hole" per la definizione del cono centrale dei due fasci, le valvole di sicurezza a chiusura rapida, le linee di ritardo, le schermature in piombo e in cemento, ecc. Alla fine di questo tratto di 20 metri che chiamiamo front-end (Fig. 9.1), considerando

un'apertura di 3s ( $s_{\text{trS}} = 30$  mm;  $s' = 18$  mrad @ 100 eV , 6.5 mrad @ 1000 eV), i fasci di luce saranno larghi, rispettivamente, un millimetro e 400  $\mu\text{m}$  circa e ciascuno di essi potrà essere deflesso da uno o più (in questa ipotesi, due) specchi piani a incidenza radente opportunamente raffreddati. Date le dimensioni e la divergenza dei fasci di luce questi primi specchi risulteranno relativamente corti (10÷15 cm) anche per angoli di radenza inferiori al grado permettendo così, con una opportuna scelta del coating, di operare in condizioni di riflessione totale. Il fascio di luce ad alta energia dovrà essere deviato di almeno  $4^\circ$  rispetto all'asse dell'ondulatore; il fascio a bassa energia sarà deviato di  $8^\circ$ .



**Fig. 9.1 – Front-end e zona deflessione fasci X**

Dopo la prima deflessione i due fasci viaggeranno indisturbati per 80÷90 metri e si allontaneranno dal linac rispettivamente di 5.4 e di 12.7 metri; qui sarà possibile collocare il laboratorio (Fig. 9.2). All'interno del laboratorio saranno costruite le linee di luce vere e proprie, costituite dalle ottiche di ingresso, dai monocromatori, dalle ottiche di rifocalizzazione e dalle stazioni sperimentali. Considerato che nell' intervallo di energia previsto in questa fase del progetto (100÷1000 eV), una linea di luce con potere risolutivo  $h\nu/Dh\nu$  compreso tra 10000 e 20000 è lunga circa 20 metri e che due apparati sperimentali per ciascuna linea, montati su piattaforma rotante, possono occupare una superficie di 25  $\text{m}^2$ , lo spazio occupato dalle linee si estenderà per circa 25÷30 metri all'interno del laboratorio che occuperà una superficie di 700  $\text{m}^2$  con una altezza di almeno 7 m tale da consentire l'installazione di un carroponete.

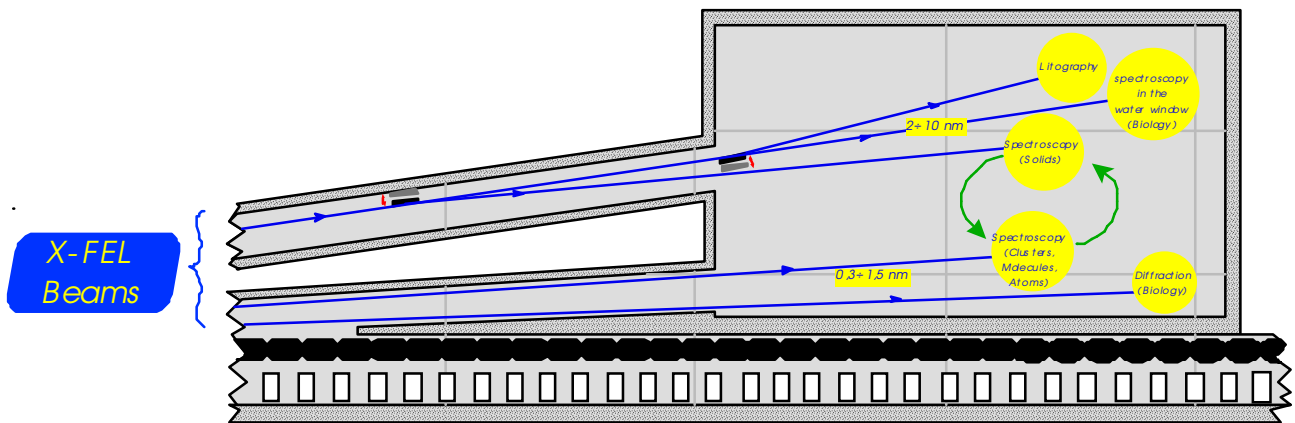


Fig. 9.2 – Area sperimentale

Due linee di luce nell'area sperimentale, anche se dotate, ciascuna, di due apparati sperimentali, rappresentano sicuramente una soluzione minima. Si può ottenere un più efficiente utilizzo della luce distribuendo i due fasci laser su più linee. Questo non dovrebbe risultare particolarmente difficile soprattutto se consideriamo che all'ingresso del laboratorio i due fasci saranno larghi abbastanza (6 e 2 mm circa senza tener conto dell'allargamento dovuto all'errore di forma degli specchi generalmente ritenuto ammissibile:  $2.5 \div 1.5$  mrad RMS), da permettere di sezionarli per mezzo di ulteriori specchi come indicato in Fig. 9.2. Maggiori dettagli sulle varie stazioni sperimentali sono forniti nel Cap. 2.

## 9.2 SULLE OPERE CIVILI

Gli studi approntati in questa fase della progettazione sono finalizzati a fornire, nell'ambito del programma finanziario, delle indicazioni attendibili sui costi delle opere civili necessarie.

Il manufatto consiste, molto schematicamente, in una galleria sotterranea con alcune articolazioni rispondenti all'alloggiamento di macchine diverse, di due laboratori a quota della galleria e da due laboratori esterni. Oltre a queste opere sono previste delle torri modulari di servizio alla galleria poste ogni 100 m circa rispetto al percorso sotterraneo.

Il progetto del tracciato è stato scelto in base alla considerazione di una serie criteri:

- sicurezza: il manufatto della galleria ha sempre almeno 5.00 m di terra fino al piano di campagna;
- movimenti di terra: rispetto alla morfologia del suolo si è scelta la posizione che, rispettando il primo fattore, consentisse il minimo spostamento di terra per abbattere i costi;
- opere esistenti: il manufatto interseca alcuni tracciati stradali e non opere d'arte ad essi relative e non attraversa insediamenti di alcun genere.

Scelto il tracciato, secondo i succitati criteri, l'asta della galleria è stata slittata lungo l'asse, affinché l'ubicazione dei manufatti emergenti, ivi comprese le torri di servizio, interessasse aree,

all'attualità, completamente libere: in particolare il manufatto ha inizio nel comparto di Piano Particolareggiato indicato con il n 16, che ospiterà in un prossimo futuro l'insediamento della Facoltà di Scienze Matematiche, Fisiche e Naturali e termina nel comparto VA4 che sarà destinato ad Orto Botanico, in vicinanza dell'area della Ricerca CNR di Tor Vergata. Le due testate indicate segnano il tracciato nella sua estensione massima futura (1300 m). All'attualità la galleria si attesta sul laboratorio posto a 406 m dall'inizio e che si trova ubicato nel comparto VA3, in un area di confine del comparto facilmente raggiungibile dalle infrastrutture stradali.

La configurazione dei manufatti è stata valutata in funzione di due criteri:

- sicurezza: sia per i ricercatori che per coloro che in qualsiasi modo e per qualsiasi motivo si trovino in prossimità della struttura;
- funzionalità: sia per ottimizzare la situazione attuale sia per non inficiare possibilità di sviluppi futuri.

Per rispondere al primo criterio sono stati utilizzati per la realizzazione di tutti i manufatti a contatto con sia pur piccole quantità di radiazioni calcestruzzi al solfato di bario in spessori minimi di 50 cm, inoltre gli accessi agli spazi eventualmente a contatto con radiazioni sia pur momentanee, sono stati segmentati con opportune aree filtro, dotate di impiantistica di areazione particolare.

Per rispondere al secondo criterio si è data risposta attenta e calibrata alle richieste dei ricercatori, tenendo libera, per consentire espansioni future una delle testate degli edifici dei laboratori, facilitando, anche da un punto di vista costruttivo (tipologia delle fondazioni e geometria dei piedritti dello scheletro portante), la fattibilità dell'operazione.

Va precisato che tutte le opere in sotterraneo, ivi comprese le torri di servizio, anche per la parte emergente, sono realizzate in calcestruzzo di cemento, in parte al solfato di bario, armato, mentre i laboratori fuori terra sono realizzati con l'ossatura portante in acciaio secondo gli standard costruttivi con i quali si realizzano i manufatti dell'Ateneo.

In sintesi i dati costruttivi vengono successivamente riepilogati:

### **Laboratorio sperimentale in testa alla galleria a quota 0,00 m**

Il laboratorio viene realizzato su un unico piano a pianta rettangolare di dimensioni 14,7 m x 41,1 m ed un'altezza fuori terra di 6 m. All'interno sono stati collocati: un blocco servizi, composto da scale ed ascensori che permettono il collegamento con il laboratorio sottostante; una zona di controllo; una zona impianti; tre laboratori di 40 mq; una sala criogenia di 110 mq; un laboratorio di 136 mq, collegato direttamente con il laboratorio interrato tramite un pozzo di apertura 5m x 3m, dotato di carroponte.



### **Laboratorio sperimentale in testa alla galleria a quota –11,20 m**

Nel laboratorio interrato, di dimensioni 17,10 x 14,70 m, oltre la zona servizi e d il locale impianti si collocano due sale: la sala lavoro di circa 40 mq; un sala assemblaggio di circa 78 mq direttamente collegata con la sala del laboratorio soprastante tramite il pozzo.

### **Laboratorio sperimentale a 406 m dalla testa del tunnel a quota 0,00 m**

Il laboratorio viene realizzato a pianta rettangolare su tre livelli con le dimensioni di 14,7 m in larghezza e 45,1 in lunghezza ed un'altezza fuori terra di 11,00 m. Al piano terra, a quota 0,00 m, sono stati collocati: un blocco servizi completo di scale, un montacarichi (dimensioni 3 x 2) e un locale impianti, che collegano tutto l'edificio con il laboratorio sottostante; una zona controllo ingresso; tre sale controllo esperienze di 40 mq ciascuna; una sala controllo linac di 112 mq; una sala assemblaggio di 142 mq con uno spazio a doppia altezza per consentire il montaggio di macchinari di grosse dimensioni; un blocco di scale ed ascensore che collega i piani superiori. Al piano primo, quota +3,50 m, troviamo: due sale controllo esperienze di 40 mq ciascuna; sei studi di 19,50 mq ciascuno ed uno studio di 28,50 mq. Al piano secondo, quota +7 m, ci sono: tre laboratori di 56 mq ciascuno ed uno di 84 mq; sei studi di 19,50 mq ciascuno ed uno di 28,50 mq.

### **Laboratorio sperimentale a 406 m dalla testa del tunnel a quota –13,20 m**

Il laboratorio è stato realizzato con in un unico vano di 20 x 30 m con una altezza libera di 6 m, al quale è stato aggiunto un blocco servizi, costituito da una scala ed un montacarichi, che permette il collegamento al laboratorio soprastante. Inoltre il laboratorio è dotato di un carroponete per il movimento dei materiali pesanti.

### **La galleria**

La galleria si estende per 1300 m ed è realizzata a sezione rettangolare con due vani a dimensioni variabili ed un'altezza netta costante pari a 3 m.

- Nel tratto tra 0-210 m i vani hanno le dimensioni di 4x3 e 5x3 m.
- Nel tratto tra i 210-320 m i vani hanno le dimensioni di 6x3 e 5x3 m.
- Nel tratto tra i 320-735 m i vani hanno le dimensioni di 4x3 e 5x3 m, a circa 330 m partono due corridoi laterali, con inclinazione di 4° ed 8° con dimensioni 2x3 m, che terminano nel laboratorio sperimentale, alla quota –13,20.

- Nel tratto tra i 735-950 m i vani hanno le dimensioni di 6x3 e 5x3 m.
- Nel tratto tra i 950-1300 m i vani hanno le dimensioni di 4x3 e 5x3 m, a circa 1000 m partono due corridoi laterali, con inclinazione di 2° ed 4° con dimensioni 2x3 m, che terminano nel laboratorio sperimentale, alla quota -13,40.

## Riepilogo

In Tab. 9.I sono riassunte le caratteristiche salienti delle opere edili

**Tab. 9.I – Riepilogo opere edili**

<b>Tipologia del manufatto</b>	<b>Superficie occupata</b>	<b>Volumetria</b>
Laboratori in testa alla galleria a quota -11,20 m	246 mq	1058 mc
Laboratorio in testa alla galleria a quota 0,00 per 1 piano fuori terra	605 mq	2662 mc
Laboratori a 406 m dall'inizio della galleria a quota -13,00 m	837 mq	7030 mc
Laboratori a 406 m dall'inizio della galleria a quota 0,00 m per 3 piani fuori terra	663 mq	6962 mc

La stima dei costi per la realizzazione dei primi 500 m del tunnel è riportata in Tab. 9.II

A seguito di un incontro tra il Rettore dell'Università di Roma "Tor Vergata", i Presidenti del CNR e INFN e il Commissario dell'ENEA, la regione Lazio ha espresso l'interesse a farsi carico della copertura dei costi relativi alle infrastrutture, comprensivi di realizzazione della cabina elettrica, fino ad un importo di circa 20M€.

<b>Stima del computo metrico di massima per la realizzazione del tunnel per i primi 500 m.</b>					
<b>Descrizione</b>	<b>Unità di misura</b>	<b>Quantità</b>	<b>Costo unitario</b>	<b>Costo totale</b>	
<b>Realizzazione del tunnel interrato con pendenza dello 1,22%, compreso:</b>					
- scavo di sbancamento a quota variabile (dipendente dalla quota di posa del tunnel);					
- sbadacchiatura delle pareti laterali dello scavo per un'altezza di 2,5 m;					
- esecuzione del getto in cls per la realizzazione del magrone di sottofondazione;					
- esecuzione delle pareti in cls, con uno spessore di 50 cm, per la realizzazione del tunnel compresa l'armatura;					
- additivo in solfato di bario per la protezione dalle emissioni radioattive nella zona del laboratorio interrato;					
- realizzazione delle casseforme rette o centinate sia per le pareti del tunnel, sia per il magrone di sottofondazione					
- impermeabilizzazione del tunnel con doppio strato di guaina steso a caldo;					
- reinterro con il materiale di risulta dello scavo;					
- carico e trasporto alla discarica autorizzata dei materiali di risulta;					
- ripristino delle interferenze stradali precedentemente rimosse;					
	ml	500	€ 10.438,63	€ 5.219.315,00	
	mc	3600	€ 361,52	€ 1.301.472,00	
<b>Realizzazione delle vie di fuga ad interasse di 100 m</b>					
<b>Realizzazione degli edifici interrati adibiti a laboratorio e realizzati a livello del tunnel</b>					
- edifici posti all'inizio del tunnel	mc	1.058	€ 516,46	€ 546.414,68	
- edifici adibiti a laboratorio sperimentale posti a circa 440 m dall'inizio del tunnel;	mc	7.030	€ 516,46	€ 3.630.713,80	
<b>Realizzazione degli edifici adibiti a laboratorio sperimentale realizzati fuori terra</b>					
- edifici collocati in testa al tunnel;	mc	2.662	€ 361,52	€ 962.366,24	
- edifici per laboratori sperimentali collocati a circa 440 metri dall'inizio del tunnel;	mc	6.962	€ 361,52	€ 2.516.902,24	
<b>Totale</b>				<b>€ 14.177.183,96</b>	
<b>Realizzazione del tunnel per i successivi 800 metri</b>					
- realizzazione del tunnel come ai punti precedenti.	ml	800	€ 13.052,01	€ 10.441.608,00	

## 10. DIAGRAMMA TEMPORALE

La durata del progetto è stimata in 6 anni. Una stima della durata delle diverse fasi del progetto è riportata nella tabella seguente:

	<i>1° anno</i>	<i>2° anno</i>	<i>3° anno</i>	<i>4° anno</i>	<i>5° anno</i>	<i>6° anno</i>
progetto	XXXXXXXX	XX				
iniettore	XXXX	XXXXXXXX	XXX			
Linac (2.5 GeV)		XXXXXXXX	XXXXXXXX	XXXXXXXX	XXXXXXXX	
Ondulatore (13.5 nm)	XXXX	XXXXXXXX	XXXXXXXX	XXX		
Ondulatore (1.5 nm)			XXXXXXXX	XXXXXXXX	XXXXXXXX	
Linee luce (R&D)	XXXX	XXXXXXXX				
Linee di luce (costruzione)			XXXXXXXX	XXXXXXXX	XXXXXXXX	
commissioning						XXXXXXXX
Progetto infrastrutture	XXXXXXXX					
Realizzazione opere edili		XXXXXXXX	XXXXXXXX	XX		

## 11. PERSONALE E COSTI DI GESTIONE

Come richiesto dal bando (Art. 2 punto 5), è previsto l'inserimento all'interno delle strutture partecipanti e ai fini dello sviluppo delle attività, di giovani ricercatori e/o ricercatori di chiara fama con contratti di durata almeno triennale. Una stima delle necessità ha portato ad individuare in 35 uxa la risorsa necessaria, corrispondente ad un costo medio (tra giovani ricercatori e ricercatori esperti) di 70 k€/uxa. L'importo globale (a totale carico FIRB) sarà pari a 2.45 M€.

Nell'ipotesi di 6 anni di durata del progetto e considerando a regime già dal terzo anno un personale costituito da circa 100 unità, sono state stimate necessarie risorse umane integrate per l'intero progetto pari a 400 uxa (comprensivi dei 35 uxa a tempo determinato a carico FIRB). Assumendo un costo medio pari a 50 k€/uxa si arriva a un costo totale pari a:

***COSTO PERSONALE: 20 M€***

La copertura di tali costi sarà, come prima rilevato, a carico del FIRB per **2.45 M€** e a carico degli Enti, come parte di cofinanziamento richiesto dal progetto per l'importo di **17.55 M€**

Riguardo ai costi di gestione si può stimare un importo, nella fase di realizzazione, pari a circa 1.5 M€/anno, per un importo globale su sei anni pari a 9 M€. Anche in questo caso la copertura sarà a carico dagli Enti proponenti, portando il cofinanziamento totale al valore richiesto di 26.55 M€. (cofinanziamento al 30% corrispondente al finanziamento FIRB depurato dei costi di istruttoria (0.65 M€) e dei costi del personale da assumere a tempo determinato (2.45 M€), che è a totale carico FIRB)

## 12. ANALISI DEI COSTI GLOBALI

Nella tabella seguente è riportato il riepilogo dei costi, comprensivi di IVA (in M€):

	FIRB	Entrate da altri progetti	ENTI PROPONENTI	ALTRI ENTI
<i>IMPIANTO</i>	51.6	6.7		
<i>PERSONALE DA ASSUMERE</i>	2.45			
<i>PERSONALE ENTI PROPONENTI</i>			17.55	
<i>CONTINGENZA (circa 20% dei costi dell' impianto)</i>	12.5			
<i>SPESE DI ISTRUTTORIA</i>	0.65			
<i>COSTO DI GESTIONE PER GLI ANNI DEL PROGETTO</i>			9	
<i>SITO</i>				In comodato
<i>INFRASTRUTTURE E IMPIANTI CONVENZIONALI</i>				14.18
<i>CABINA ELETTRICA</i>				2
<b><i>TOTALI</i></b>	<b>67.2</b>	<b>6.7</b>	<b>26.55</b>	<b>16.18</b>

### **13. ANALISI DELLA STRUTTURA DI REALIZZAZIONE E DI GESTIONE DELL'IMPRESA**

La gestione dell'impresa richiede lo sforzo sinergico dei tre ENTI e di una struttura universitaria. Inoltre l'azione degli ENTI si svolgerà, nell'ipotesi in cui il sito di realizzazione della macchina sia quello dell'Università di Roma "Tor Vergata", in un territorio che non è di propria competenza. I necessari rapporti e interazioni con strutture territoriali, ENTI locali e Regione verrebbero difficilmente svolti nell'ambito di una gestione che preveda l'intervento combinato delle amministrazioni dei singoli ENTI e della Università. E' pertanto necessario creare una struttura (ad esempio di tipo CONSORTILE), concordata tra le istituzioni coinvolte nella realizzazione dell'opera, che possa gestire l'impresa nella maniera più agile ed efficiente possibile. Il consorzio si farà carico della costruzione per conto dei soci e del relativo commissioning.

Successivamente al commissioning si apre la fase di gestione ordinaria della macchina, secondo le esigenze dell'utenza e la possibile estensione della struttura fino all'operazione nella regione dell'Angstrom (fase 2). Fermo restando che la fase di estensione deve convivere con quella di gestione, il medesimo consorzio si farà carico del completamento dei lavori.

Nell'ipotesi in cui non si proceda alla fase di estensione (fase 2), si intende che il consorzio viene sciolto. La gestione della infrastruttura di ricerca verrà così affidata ad opportuna struttura che verrà attivata dagli enti partecipanti che ne assicurerà la operatività secondo le necessità dell'utenza. Tale struttura potrà essere realizzata o attraverso modifica del consorzio di cui sopra o attraverso realizzazione di una struttura ad hoc, nella quale gli enti utenti avranno responsabilità primaria nella direzione e gestione. I costi di gestione a regime vengono conservativamente stimati pari a circa 20M•/anno (personale compreso).