

POLITECNICO DI MILANO

Scuola di Ingegneria Industriale e dell'Informazione

Corso di Laurea Magistrale in
Ingegneria Nucleare



Produzione e caratterizzazione di bersagli multistrato
per l'accelerazione di ioni mediante laser superintensi

Relatore: Prof. Matteo PASSONI

Correlatore: Dott. David DELLASEGA

Tesi di Laurea Magistrale di:

Andrea PAZZAGLIA matr. 818179

Anno Accademico 2014-2015

Ad Eleonora

Indice

Premessa	i
1 Introduzione all'accelerazione di ioni mediante laser superintensi	1
1.1 Impulsi laser superintensi e ultrabrevi	1
1.2 Interazione di impulsi laser superintensi con la materia	5
1.3 Accelerazione di ioni mediante interazione di impulsi laser superintensi con bersagli solidi	11
1.3.1 Osservazioni sperimentali e potenziali applicazioni	11
1.3.2 Meccanismi di accelerazione: <i>Target Normal Sheath Acceleration</i> (TNSA)	12
1.3.3 Modelli analitici per la TNSA	15
1.4 Sviluppi nel processo di accelerazione di ioni	18
1.4.1 Ottimizzazione dei parametri laser	18
1.4.2 Bersagli convenzionali	21
1.4.3 Bersagli non convenzionali	24
1.4.4 Bersagli multistrato con schiume di Carbonio	29
2 Tecniche di fabbricazione di schiume di Carbonio e di diagnostica di ioni accelerati	34
2.1 Introduzione	34
2.2 Tecniche di produzione di schiume di Carbonio	35
2.2.1 <i>Pulsed Laser Deposition</i> (PLD)	35
2.2.2 Deposizione di schiume di Carbonio con PLD	38
2.3 Tecniche di caratterizzazione di schiume di Carbonio	40
2.3.1 <i>Scanning Electron Microscope</i> (SEM) e <i>Energy Dispersive X-ray Spectroscopy</i> (EDXS)	40
2.3.2 Caratterizzazione della morfologia e misura dello spessore con SEM	41
2.3.3 Misurazione di densità di film sottili mediante EDXS	43
2.4 Strumenti di diagnostica di ioni accelerati da laser	49

2.4.1	Rivelatori di particelle cariche	49
2.4.2	Spettrometro a Parabola Thomson	52
2.5	Obiettivi della tesi	54
3	Sviluppo della tecnica basata su EDXS per la valutazione della densità di film sottili	56
3.1	Introduzione	56
3.2	Sviluppo della tecnica	57
3.2.1	Modelli alternativi per <i>Probability Function of X-ray Production</i> (PFXP)	57
3.2.2	Modello correttivo per campioni multistrato	61
3.2.3	Risoluzione dell'equazione del trasporto di elettroni	67
3.3	Risultati	71
3.3.1	Validazione della tecnica con film di densità nota	71
3.3.2	Applicazione a bersagli multistrato con schiume di Carbonio	75
4	Esperimenti di accelerazione di ioni con bersagli multistrato con schiume di Carbonio	79
4.1	Obiettivi degli esperimenti	79
4.2	Produzione e caratterizzazione di bersagli multistrato con schiume di Carbonio	80
4.3	<i>Setup</i> sperimentale CoReLS	84
4.4	Elaborazione dei dati di spettrometri a Parabola Thomson	86
4.5	Analisi dei risultati di esperimenti di accelerazione di ioni da laser	91
4.5.1	Problematiche	91
4.5.2	Analisi degli spettri di ioni da bersagli micrometrici	94
4.5.3	Analisi degli spettri di ioni da bersagli <i>ultrathin</i>	96
5	Conclusioni e sviluppi futuri	102
	Bibliografia	106

Elenco delle figure

1.1	Storia della crescita dell'intensità di picco dei laser e relativi regimi di interazione con la materia.	3
1.2	Schema di funzionamento della CPA.	4
1.3	Mappa mondiale di sistemi laser ad alta intensità (oltre i 100 TW di picco) nel 2006 (a sinistra); è mostrato l'avanzamento dopo pochi anni, nel 2010, in Europa, Russia e India (a destra). Preso da <i>International Committee on Ultra-High Intensity Lasers</i> [4].	6
1.4	Rappresentazione schematica della forza ponderomotiva generata da un impulso di alta intensità.	8
1.5	Rappresentazione schematica della <i>Laser Wake Field Acceleration</i> LWFA.	9
1.6	Perturbazione della densità elettronica $\delta e/n_e$, in rosso, e campo elettrico longitudinale normalizzato E_{wake}/E_p , in blu; (a) per bassa intensità, $\mathbf{a} = 0.3$, (b) per intensità elevata, $\mathbf{a} = 1$	9
1.7	Schema di assorbimento risonante; un'onda polarizzata P incide non perpendicolare in un plasma con un gradiente di densità esponenziale. L'onda propaga fino al punto in cui $n = n_c \cos(\theta)$, dove viene riflessa; una parte di essa può arrivare, come onda evanescente, al punto in cui la densità è critica e dar luogo ad assorbimento risonante.	10
1.8	Schema di funzionamento della TNSA. In (a) il pre-impulso ionizza il target e il plasma inizia ad espandersi; in (b) l'impulso principale interagisce con il pre-plasma e genera elettroni caldi; in (c) gli elettroni caldi raggiungono la superficie opposta e formano una nuvola elettronica dell'ordine della lunghezza di Debye; in (d) l'impulso è esaurito e il target si rompe per esplosione Coulombiana, mentre gli ioni vengono accelerati lungo la normale al bersaglio, dalla nuvola elettronica.	12

1.9	Energia massima di protoni in funzione dell'irradianza per diversi sistemi laser. Sono rappresentati due trend: per i sistemi con durata di impulso lunga (300-1000 <i>fs</i>) l'andamento segue la radice dell'irradianza, mentre per i sistemi con durata breve (30-60 <i>fs</i>) è evidenziato un andamento lineare. Da Borghesi et al. [13].	14
1.10	Potenziale e campo elettrico in funzione della coordinata <i>x</i> , ottenuti con irradianza $I\lambda^2 = 6.9 \cdot 10^{19} W/cm^2 \mu m^2$ ed energia di impulso $E_l = 0.2 J$ (linea blu) ; $0.5 J$ (linea rossa); $1.5 J$ (linea verde) ; $2.5 J$ (linea nera). Le curve sono state ottenute con il modello quasi-statico a elettroni intrappolati di Passoni et al. [15], con il quale si ottiene un potenziale va a 0 in una distanza finita. Da Cialfi [16]	17
1.11	E' mostrato lo spettro dei protoni accelerati, ottenuti da Snavely et al. [8] con i seguenti parametri laser: $I\lambda^2 = 2 \cdot 10^{20} W/cm^2 \mu m^2$, $E_l = 423 J$, $\tau_l = 500 fs$. Allo spettro sperimentale è sovrapposto lo spettro analitico ottenuto con il modello quasi-statico a elettroni intrappolati di Passoni et al. [15].	18
1.12	Sono mostrate le energie massime dei protoni accelerati in funzione della potenza per diversi laboratori. I dati sono stati raccolti da alcuni <i>scan</i> di intensità, ottenuti mantenendo costante la durata di impulso e variando l'energia, nei seguenti laboratori con i relativi bersagli: Trident 15 μm Al [17], Ral Vulcan 10 μm Al [18], Luli 20 μm Al [19].	21
1.13	Sono mostrate le energie massime dei protoni accelerati in funzione della potenza per diversi laboratori. I dati sono stati raccolti da alcuni <i>scan</i> di intensità, ottenuti mantenendo costante la durata di impulso e variando l'energia, nei seguenti laboratori con i relativi bersagli: Saclay 1.5 μm Al [20], JAEA 0.8 μm Al [21], Lund Al [22], Astra Gemini 2 μm Al [23][24], Draco 3 μm Ti [25] 5 μm Al [26], Pulser I 0.05 μm polimero [27], CoReLs 0.75 Al [28] 0.7 Mylar [29].	22
1.14	Energia massima di protoni accelerati in funzione dello spessore del <i>target</i> di alluminio. Sono distinti i casi di alto contrasto (HC) e basso contrasto (LC); sono anche mostrati i dati dei protoni emessi indietro (BWD). I parametri del laser sono: 65 <i>fs</i> di durata, $0.5 - 1 \cdot 10^{19} W/cm^2$ di intensità, 45° di incidenza e polarizzazione P. Da Ceccotti et al. [30].	23
1.15	In (1) è mostrato il principio di funzionamento di un bersaglio con superficie modulata. In (2) sono mostrati i film radiocromici (RCF) di protoni accelerati da un bersaglio di 18 μm di Al a intensità di $10^{19} W/cm^2$ (a-b-c), e i risultati di simulazioni con codici <i>Particle In Cell</i> (PIC) 3D con gli stessi parametri (d-e-f). Da Cowan et al. [31].	23

1.16	In (1) è mostrata l'immagine della <i>rear surface</i> microstrutturata; i punti di PMMA hanno spessore di $0.5 \mu m$ e dimensioni trasversali di $20 \times 20 \mu m$. In (2) è mostrato il meccanismo di TNSA per questo particolare bersaglio microstrutturato: la presenza di "punti" ricchi di idrogeno omogeneizza il campo accelerante dando luogo a protoni quasi-monoenergetici ad alta laminarità. Da Schwoerer et al. [35].	25
1.17	In (a) è mostrata l'energia massima dei protoni in funzione del diametro del target di oro. In (b), per il bersaglio migliore ($75 \mu m$), viene rappresentato il guadagno in energia massima. In (c) sono comparati spettri di protoni di RMT e di bersagli standard. Da Zeil et al. [37].	26
1.18	(a) Apparato sperimentale del Trident. (b) Spettro elettronico simulato per bersaglio RMT (in nero) e bersaglio con microcono di tipo 1 (più largo) a incidenza centrata (in verde) e incidenza con $15 \mu m$ di <i>offset</i> (in rosso) e di tipo 2 (più stretto) a incidenza centrata (in blu); sono anche mostrate i limiti dati dallo <i>scaling</i> ponderomotore e da quello di <i>direct laser-light-pressure</i> . Da Gaillard et al. [38].	27
1.19	In (a) è rappresentata l'energia massima dei protoni in funzione dell'intensità per bersaglio standard (in nero) e bersaglio nanostrutturato (in rosso). In (b) lo spettro energetico dei protoni per bersaglio standard (in nero) e bersaglio nanostrutturato (in rosso). Da Margarone et al. [29].	28
1.20	In (a) è rappresentato lo schema dell'apparato sperimentale di Wagner et al. [42]. In (b) l'energia massima di protoni normalizzata, in funzione dello spessore del <i>target</i>	29
1.21	In (1) è rappresentato lo schema dell'apparato sperimentale dello <i>spin-coating</i> : (a) una soluzione contenente il soluto da depositare viene depositato su un disco che viene posto in rotazione (b) e (c), infine il solvente viene fatto evaporare (d). In (2) è rappresentato lo schema dell'apparato sperimentale della <i>DC glow discharge sputter deposition</i> ; la scarica elettrica tra anodo e catodo forma un plasma della composizione di anodo e catodo che veicola la deposizione di particelle energetiche sul substrato.	29
1.22	Energia massima di protoni in funzione della potenza di impulso, per impulsi lunghi ($300-1000 fs$); i valori ottenuti con bersagli avanzati sono rappresentati in blu con una freccia che indica l'aumento di energia rispetto al bersaglio convenzionale.	30
1.23	Energia massima di protoni in funzione della potenza di impulso, per impulsi brevi ($30-50 fs$); i valori ottenuti con bersagli avanzati sono rappresentati in blu con una freccia che indica l'aumento di energia rispetto al bersaglio convenzionale.	30

1.24	In (a) è mostrato lo spettro energetico degli ioni C^{6+} (linee continue) e di protoni (linee tratteggiate) ottenuti con fogli DLC combinati con <i>Carbon Nanotube Foam</i> (CNF) di diversi spessori, irradiati da impulsi con polarizzazione circolare. In (b) è mostrato lo spettro energetico degli ioni C^{6+} sotto le condizioni migliori, per polarizzazione circolare (in rosso) e lineare (in blu). Da Bin et al. [24].	31
1.25	In (a) è mostrata l'energia massima di protoni in funzione dell'intensità del laser per <i>target</i> convenzionali di $0.75 \mu m$ di Alluminio (simboli vuoti) e <i>target multistrato</i> (simboli pieni), per diverse polarizzazioni: S (in blu), P (in rosso), C (in nero). Da Passoni et al. [28]. In (b) è mostrata l'energia massima di protoni (sopra) e ioni Carbonio (sotto) in funzione dello spessore del film di schiuma di Carbonio, con intensità pari a $4 \cdot 10^{20} W/cm^2$ e diversa polarizzazione: S in blu, P in rosso, C in nero. Da Prencipe et al. [45].	32
1.26	Energia massima di protoni in funzione dell'intensità del laser per <i>target</i> convenzionali di Alluminio (in nero) e <i>target multistrato</i> con $12 \mu m$ di schiuma (in rosso), per polarizzazione P. I dati a intensità moderata sono stati raccolti a Saclay, con substrato spesso $1.5 \mu m$ e incidenza a 10° , lo <i>scan</i> di intensità è stato effettuato variando il <i>focal spot</i> ; i dati a intensità elevata sono stati ottenuti al CoReLS, con substrato di $0.75 \mu m$ e incidenza a 30° , lo <i>scan</i> di intensità è stato effettuato variando l'energia dell'impulso. Le diverse condizioni di esperimento spiegano la diversa pendenza delle rette interpolanti. Da Prencipe [46].	33
2.1	Schema dell'apparato sperimentale della tecnica <i>Pulsed Laser Deposition</i>	36
2.2	Viene mostrata la piuma di ablazione di Tungsteno in diverse condizioni di pressione di gas ambientale: in vuoto (a) e in Elio a bassa pressione (b) il film depositato è compatto, mentre in Elio ad alta pressione (c) il film è poroso.	37
2.3	Schiume di Carbonio prodotte da PLD nel regime dei ps: (a) immagine ottenuta con STEM che mostra la tipica formazione di <i>cluster</i> ; (b) immagine ottenuta con SEM che mostra la struttura a rete, con magnificazione inferiore. Da Rode et al. [47]. (c) Immagine ottenuta con HR-STEM illustrativa di una nanoparticella di Carbonio, depositata in atmosfera di Elio a $200 Pa$. Le dimensioni caratteristiche sono di $20 nm$. Da Zani et al. [48].	39
2.4	Spettro ottenuto tramite EDXS di un campione contenente diversi elementi. E' visibile la radiazione di <i>Bremmstrahlung</i> a cui sono sovrapposti i picchi X caratteristici. Il software riconosce automaticamente, in base all'energia del picco, l'elemento corrispondente.	42

2.5	Immagini SEM, viste dall'alto, di campioni depositati in Elio (riga superiore) e in Argon (riga inferiore) a diverse pressioni: (a,d) 30 Pa, (b,e) 100 Pa, (c,f) 500 Pa.	43
2.6	Immagini SEM, viste da una sezione trasversale, di campioni depositati in Elio (riga superiore) e in Argon (riga inferiore) a diverse pressioni: (a,d) 30 Pa, (b,e) 100 Pa, (c,f) 500 Pa.	44
2.7	Densità media dei film depositati, misurata a pressione di gas in camera: Elio (quadrati rossi) e Argon (cerchi neri).	44
2.8	Prima <i>Probability Function for X-ray Production</i> (PFXP) sperimentale misurata per Oro, Rame e Alluminio da Castaing [51].	45
2.9	Metodi per misurare lo spessore massico di un film tramite EDXS. a) Emissione di raggi X da un <i>coating</i> con spessore t e da un substrato, a causa di un fascio di elettroni incidente. b) Emissione di raggi X da un campione di riferimento per il metodo del <i>coating</i> e del substrato. Da Prencipe et al. [50].	46
2.10	Spessore massico di un film sottile di Argento depositato su un substrato di Oro misurato tramite QCM (in nero) e EDXS (in blu attraverso il metodo del substrato, in rosso attraverso il metodo del <i>coating</i>), in funzione del voltaggio di accelerazione. Da Prencipe et al. [50].	49
2.11	Densità delle schiume di carbonio misurate con QCM (simboli pieni) e con il metodo del substrato (simboli vuoti) in funzione del gas (Elio in blu, Argon in rosso) della relativa pressione in camera. Da Prencipe et al. [50].	50
2.12	(a) Sequenza di film RCF esposti a un fascio di protoni generato dalla <i>facility laser</i> PHELIX. Il numero corrisponde all'energia E_B . (b) Curve di deposizione di dose di protoni di diversa energia in funzione della profondità (picco di Bragg).	51
2.13	(a) Schema di funzionamento di rivelatori a scintillazione. Il fascio di ioni incide su diversi scintillatori in funzione dell'energia; la luce dei rivelatori viene filtrata e raccolta da una CCD. (b) Profilo trasversale di un fascio di protoni, ottenuto con un rivelatore a scintillazione con una finestra a due energie, generato irraggiando un bersaglio di 100 nm di Alluminio a intensità $\sim 5 \cdot 10^{20} W/cm^2$ con alto contrasto ($> 10^9$). E' possibile osservare che la componente più energetica del fascio è caratterizzata da un angolo di divergenza inferiore.	52
2.14	(a) Apparato sperimentale di uno spettrometro a Parabola Thomson. La deflessione è effettuata tramite un campo elettrostatico, generato da un condensatore piano, e magnetostatico, generato da una bobina. Le particelle deflesse sono rivelate da uno schermo a fosfori e da una CCD. (b) Tipica immagine CCD di uno spettrometro a Parabola Thomson.	53

3.1	Sono mostrate le PFXP di Alluminio ($Z=13$, riga K, $E_c=1.486\text{ keV}$) ottenute con due modelli semiempirici, di Bastin e di Packwood e Brown (metodo RE), con CASINO e attraverso il metodo dei traccianti usato per la prima volta da Castaing [51]; il potenziale di accelerazione è di 10 kV	59
3.2	sono mostrati i valori della norma L2 tra le PFXP ottenute con il metodo RE e con l'interpolazione delle simulazioni Montecarlo, la norma è stata calcolata suddividendo le curve in successioni di 500 valori; gli elementi analizzati sono Al ($Z=13$, riga K, $E_c=1.486\text{ keV}$), Cu ($Z=29$, riga LIII, $E_c=0.94\text{ keV}$), Ag ($Z=47$, riga LIII, $E_c=2.98\text{ keV}$), W ($Z=74$, riga MV, $E_c=1.8\text{ keV}$), Au ($Z=79$, riga MV, $E_c=2.1\text{ keV}$) con i valori di energia degli elettroni incidenti di 2, 5, 10, 20, 30 keV . Poiché l'energia critica dell'argento e dell'oro è superiore a 2 keV , non vengono prodotti raggi X nel caso di energia degli elettroni di 2 keV e dunque il primo valore è stato imposto uguale a 0.	60
3.3	Sono mostrate le PFXP ottenute con un campione di Tungsteno ($Z=74$, riga MV, $E_c=1.8\text{ keV}$) con il metodo RE e con CASINO, il potenziale di accelerazione è pari a 5 kV	61
3.4	Sono mostrate PFXP, simulate con CASINO, di Silicio (in blu), di Silicio con un film di 100 nm di Tungsteno (in rosso); a quest'ultima è stato moltiplicato il fattore di <i>backscattering</i> (in verde). Le curve sono state ottenute con un potenziale di accelerazione di 17 kV	63
3.5	Schema del modello di correzione per <i>backscattering</i> ; il fascio di elettroni del SEM incide sul substrato con un'energia $E_0[\text{keV}]$ e una fluensa $I_0[1/\text{m}^2\text{sec}]$, il fascio viene in parte trasmesso con un'energia media e una fluensa E_d e I_d e in parte retrodiffuso con E_b e I_b	64
3.6	Spettro degli elettroni retrodiffusi, ottenuto con CASINO e con il modello di Niedrig [61], da un campione di Silicio, con un potenziale di accelerazione di 17 kV . L'accordo non è ottimo, tuttavia è sufficiente per ottenere un valore di k_b con un errore entro il 10%.	65
3.7	Simulazione di CASINO; sono mostrati i percorsi di elettroni accelerati a 17 kV all'interno di un sistema con un substrato di Oro e un <i>coating</i> di Carbonio di 300 nm con densità pari a quella della grafite (2.62 g/cm^3). . .	66
3.8	Schema del modello di correzione per <i>backscattering</i> ; il fascio di elettroni del SEM incide sul film con energia pari a E_0 e fluensa I_0 , il fascio viene in parte trasmesso con energia E_d fino al substrato dove viene trasmesso con energia E_s ; tale energia è la somma di diversi contributi dovuti al fatto che gli elettroni vengono continuamente retrodiffusi tra il film e il substrato. . .	67

3.9	E' rappresentata la distribuzione $f(x, \theta, s)$ sul piano $x \times \theta$ per valori di distanza percorsa s crescenti: in (a) $s = 0.2s_R$, in (b) $s = 0.4s_R$, in (c) $s = 0.6s_R$, in (d) $s = 0.8s_R$. Nelle immagini in alto si osservano le oscillazioni smorzate tipiche dello schema Lax-Wendroff, che scompaiono quando la diffusione aumenta a causa dell'energia V inferiore	70
3.10	Sono mostrate le PFXP ottenute con tre differenti modelli: simulazione Montecarlo [59] (in blu), modello semiempirico MSG - metodo RE [53] (in verde), risoluzione dell'equazione del trasporto [63] (in blu). Si sono confrontati i modelli per l'elemento Al a diversi valori di energia di elettroni (5, 10, 20, 30 keV) e si osserva che per energie relativamente elevate (≥ 10 keV) il metodo semiempirico si discosta dalla simulazione Montecarlo, presa come riferimento per la sua affidabilità, mentre il modello di trasporto mantiene un buon accordo a tutte le energie.	72
3.11	(Sono mostrate le PFXP di Alluminio ottenute con energia 10 keV, con diversi spessori di film di Carbonio di densità 2.3 g/cm^3 (100 nm in verde, 500 nm in rosso), calcolate con la simulazione Montecarlo (a) e il modello di trasporto (b). Gli assi delle ordinate sono in unità arbitrarie.	73
3.12	Viene mostra la densità di un deposito di Argento su Oro ottenuta con la microbilancia e con la tecnica basata su EDXS con diversi modelli per la PFXP in funzione del voltaggio di accelerazione: modello MSG, metodo RE (in blu), modello MSG, parametri di Bastin (in giallo), simulazione Montecarlo (in rosso), modello di trasporto (in arancione).	73
3.13	Viene mostra la densità di un deposito di Tungsteno su Silicio ottenuta con la microbilancia e con la tecnica basata su EDXS con diversi modelli per la PFXP in funzione del voltaggio di accelerazione: modello MSG, metodo RE (in blu), modello MSG, parametri di Bastin (in giallo), simulazione Montecarlo (in rosso), modello di trasporto (in arancione).	74
3.14	E' mostrata la curva di calibrazione, cioè la funzione che lega il rapporto di intensità allo spessore massico, per un dato sistema e un dato potenziale di accelerazione; in questo caso il sistema è dato da un film di argento su un substrato di oro, con un potenziale pari a 17 keV.	75
3.15	Sono mostrate PFXP, simulate con CASINO, di Oro (in blu), di Oro con un film di 300 nm di Argento (in rosso); a quest'ultima è stato moltiplicato il fattore di <i>backscattering</i> (in verde). Le curve sono state ottenute con un potenziale di accelerazione di 20 keV.	76

3.16	Viene mostrata la densità di un deposito di Tungsteno su Silicio ottenuta con la microbilancia e con la tecnica basata su EDXS con diversi modelli per la PFXP in funzione del voltaggio di accelerazione: modello MSG, metodo RE (in blu), simulazione Montecarlo (in rosso), simulazione Montecarlo a cui viene applicata la correzione per <i>backscattering</i> (in verde).	77
3.17	Sono mostrate PFXP, simulate con il modello di trasporto, di Silicio (in blu), di Silicio con un film di $2.5 \mu m$ (in rosso) e $12 \mu m$ (in verde) di schiuma di Carbonio con densità $10 mg/cm^3$ (in rosso); le curve sono state ottenute con un potenziale di accelerazione di $3 kV$ (a) e $5 kV$ (b).	78
4.1	Immagini SEM con vista frontale (a) e vista laterale (b) di un campione con substrato di Si e film di schiuma di C, con densità $\sim 2n_c$; ottenuto tramite PLD con i seguenti parametri: energia del laser $150 mJ$, pressione di gas in camera (Ar) $700 Pa$, distanza <i>target</i> -substrato $8.5 cm$	82
4.2	Immagini SEM con vista frontale (a) e vista laterale (b) di un campione con substrato di Si e film di schiuma di C, con densità $\sim 2n_c$; ottenuto tramite PLD con i seguenti parametri: energia del laser $125 mJ$, pressione di gas in camera (Ar) $500 Pa$, distanza <i>target</i> -substrato $8.5 cm$	83
4.3	Immagini SEM con vista frontale (a) e vista laterale (b) di un campione con substrato di Si e film di schiuma di C, con densità $\sim 2n_c$; ottenuto tramite PLD con i seguenti parametri: energia del laser $150 mJ$, pressione di gas in camera (Ar) $50 Pa$, distanza <i>target</i> -substrato $8.5 cm$	83
4.4	Regressione lineare tra spessore del film del campione e tempo di deposizione.	84
4.5	<i>target holder</i> usati negli esperimenti del 2015; in (a) e (b) sono mostrati i due diversi tipi di <i>target holder</i> , con le relative dimensioni.	84
4.6	(a) supporto dei <i>target holder</i> che viene montato nella camera a vuoto. (b) Esempio di campione irraggiato.	85
4.7	è mostrata in (a) l'area sperimentale del CoReLS con le linee del fascio laser e in (b) l'area sperimentale della camera d'interazione.	86
4.8	è rappresentato uno schema della camera d'interazione. In basso si vede la disposizione dei due <i>Plasma Mirror</i> in successione, mentre in alto è mostrata la configurazione del fascio e del bersaglio con il relativo apparato di diagnostica degli ioni accelerati (TPS sta per <i>Thomson Parabola Spectrometer</i>).	87
4.9	configurazione di uno spettrometro a Parabola Thomson, usato nel 2014 per rilevare gli ioni accelerati in direzione normale al bersaglio.	87

4.10	in (a) si vede la tipica finestra di dialogo di TIARRA: il punto di deflessione nulla è selezionato manualmente, mentre il campo elettrico viene variato in modo da interpolare la traccia della CCD. In (b) sono mostrati gli spettri energetici in unità arbitraria ottenuti con TIARRA, di ioni accelerati nel 2014 nelle seguenti condizioni: intensità $4 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$, incidenza 30° , polarizzazione P.	88
4.11	spettri energetici ottenuti con il programma sviluppato in questo lavoro di tesi, di protoni e ioni Carbonio ottenuti nel 2014 nelle medesime condizioni di figura 4.10.	88
4.12	nel riquadro superiore è mostrata la trasformata di Hough in funzione del rapporto m/q che definisce le parabole associate alle diverse specie accelerate; nel riquadro inferiore è rappresentata l'immagine acquisita dalla CCD attraverso una funzione che mostra le curve di isolivello, sulla quale sono tracciare le parabole associate ai primi due picchi della trasformata di Hough, cioè quelle di protoni e di ioni Carbonio.	90
4.13	spettri energetici di protoni e ioni Carbonio, ottenuti con il programma sviluppato in questo lavoro di tesi. Gli spettri della parte superiori sono di ioni accelerati nel 2014 con un bersaglio di $0.75 \mu\text{m}$ di Al, con i seguenti parametri laser: durata 33 fs , energia 31.5 J , incidenza 30° ; la misura è stata effettuata con il TPS2 con diametro del collimatore di 0.37 cm e CCD con densità di 51 pixel/mm^2 . Gli spettri della parte inferiore sono di ioni accelerati nel 2015 con un bersaglio di $0.75 \mu\text{m}$ di Al, con i seguenti parametri laser: durata 33 fs , energia 37.5 J , incidenza 30° ; la misura è stata effettuata con il TPS2 con diametro del collimatore di 0.28 cm e CCD con densità di 156 pixel/mm^2 e sistema di raccolta della luce 16 volte più sensibile.	92
4.14	spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio di 20 nm di polimero con i seguenti parametri laser: durata 33 fs , energia 37.5 J , incidenza 2.5° ; le misure sono state ottenute con il TPS1 con diametro del collimatore di 0.18 cm e CCD con densità di 156 pixel/mm^2	93
4.15	in (a) è mostrata la dimensione trasversale della sorgente di protoni generati da impulsi laser, per differenti energie dei protoni. Da [68]. In (b) sono schematizzate le condizioni di irraggiamento a incidenza quasi-normale (2.5°); la parte più energetica degli ioni non è emessa in direzione del TPS1 e il segnale misurato è molto attenuato.	93

4.16	sono rappresentate le energie di <i>cut-off</i> di protoni in funzione dello spessore di film di C, generati dall'irraggiamento di campioni con substrato di 0.75 μm di Al e con le seguenti condizioni: intensità $7 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 2.5° e C-pol (in blu), incidenza 30° e P-pol (in rosso).	95
4.17	sono rappresentate le energie di <i>cut-off</i> di protoni in funzione dello spessore del substrato, con spessore di film fissato a 8 μm , generati con le seguenti condizioni di irraggiamento: intensità $7 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 2.5° e C-pol (figura (a)), incidenza 30° e P-pol (figura (b)).	95
4.18	spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio di 20 nm di polimero (in arancione) e con un bersaglio multistrato 20 nm polimero - 8 μm schiuma di C (in blu), con i seguenti parametri laser: durata 33 fs , energia prima del compressore 44 J , intensità $7 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 30° , polarizzazione P; le misure sono state ottenute con il TPS2 con diametro del collimatore di 0.28 cm e CCD con densità di 156 $pixel/mm^2$	97
4.19	nel grafico di sinistra è mostrata l'energia di <i>cut-off</i> dei protoni in funzione dell'intensità, nel caso di bersagli convenzionali e bersagli multistrato; nel grafico di destra è mostrata la dipendenza dell'energia massima dallo spessore della <i>foam</i> . I risultati sono ottenuti con incidenza 30° e P-pol.	97
4.20	nel grafico di sinistra è mostrata l'energia di <i>cut-off</i> dei protoni in funzione dell'intensità, nel caso di bersagli convenzionali e bersagli multistrato; nel grafico di destra è mostrata la dipendenza dell'energia massima dallo spessore della <i>foam</i> . I risultati sono ottenuti con incidenza 2.5° e C-pol.	98
4.21	spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio di 20 nm di polimero (in arancione) e con un bersaglio multistrato 20 nm polimero - 8 μm schiuma di C (in blu), con i seguenti parametri laser: durata 33 fs , energia prima del compressore 44 J , intensità $7 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 2.5° , polarizzazione C; le misure sono state ottenute con il TPS1 con diametro del collimatore di 0.18 cm e CCD con densità di 156 $pixel/mm^2$	98
4.22	è mostrata l'energia di <i>cut-off</i> dei protoni in funzione dell'intensità, nel caso di bersagli convenzionali e bersagli multistrato e per le diverse condizioni di irraggiamento (2.5° incidenza, C-pol o 30° incidenza, P-pol); le energie ottenute a incidenza quasi normale sono sistematicamente più alte.	99
4.23	è mostrata l'energia di <i>cut-off</i> dei protoni in funzione dello spessore del film di schiuma di C, nel caso di bersagli con substrato micrometrico e <i>ultrathin</i> , nella condizione di irraggiamento di circa $6 \cdot 10^{20} W/cm^2$ di intensità, 2.5° di incidenza e C-pol.	100

4.24	spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio multistrato di 20 nm polimero - 8 μm schiuma di C (in blu) e con un bersaglio multistrato di 0.75 μm Al - 8 μm schiuma di C (in arancione), con i seguenti parametri laser: durata 33 fs, energia prima del compressore 37.5 J, intensità $6 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$, incidenza 2.5° , polarizzazione C; le misure sono state ottenute con il TPS1 con diametro del collimatore di 0.18 cm e CCD con densità di 156 pixel/mm ²	100
4.25	è mostrata l'energia di <i>cut-off</i> dei protoni in funzione dello spessore del substrato, nel caso di bersagli convenzionali (<i>bare target</i>) e multistrato (<i>foam</i>), nella condizione di irraggiamento di circa $7 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$ di intensità 30° di incidenza e P-pol.	101

Elenco delle tabelle

2.1	Sono riassunti i principali parametri di processo e i relativi effetti (qualitativi) sulla morfologia del film depositato.	38
3.1	Misure di campioni multistrato con <i>coating</i> di schiume di Carbonio a bassa densità e substrato di Silicio. La densità critica è indicata con n_c ed è pari a 5.7 mg/cm^3	78
4.1	Lista dei campioni fabbricati al NanoLab e irraggiati al CoReLS nel 2015	81

Abstract

La tecnologia laser odierna permette di raggiungere intensità elevate che aprono a nuovi regimi di interazione tra la radiazione elettromagnetica e la materia (oltre 10^{20} W/cm^2); uno dei più interessanti effetti di questa interazione è la generazione di fasci di ioni con energia di decine di MeV/nucleone . La possibilità di ottenere questi ultimi, caratterizzati da elevata laminarità, con un apparato di dimensioni e costi relativamente ridotti, ha suscitato l'interesse del mondo scientifico in vista delle possibili applicazioni tecnologiche: ad esempio l'irraggiamento di materiali, l'*imaging* ad alta risoluzione e, in futuro, la possibilità della fusione inerziale veloce e dell'adroterapia.

Recenti esperimenti hanno evidenziato come sia possibile aumentare ancora di più la massima energia raggiungibile dal fascio ionico, variando le caratteristiche del bersaglio irraggiato dal laser; in particolare è stato osservato un netto miglioramento del meccanismo di accelerazione, in campioni multistrato con film di bassa densità.

Lo scopo di questo lavoro di tesi è, quindi, produrre e caratterizzare bersagli multistrato nanostrutturati per l'ottimizzazione del processo di generazione di particelle energetiche, ed analizzare i risultati ottenuti dall'irraggiamento di tali bersagli; inoltre è stata migliorata la tecnica di caratterizzazione per determinare con più accuratezza la densità di film sottili, molto porosi.

Premessa

Il presente lavoro di tesi si colloca nell'ambito di ricerca relativa all'accelerazione di ioni (con energie di decine di $MeV/nucleone$), mediante l'interazione tra impulsi laser ultrabrevi ($10^{-14} - 10^{-12}$ s), superintensi ($> 10^{18}$ W/cm^2), e bersagli solidi di spessore micrometrico. Questo fenomeno fisico, osservato per la prima volta nell'anno 2000, ha destato l'interesse della comunità scientifica sia dal punto di vista della comprensione dello stesso, sia per la possibilità di sviluppi futuri di nuovi apparati per l'accelerazione di ioni, di dimensioni e costi contenuti rispetto alle tecniche convenzionali.

E' necessario comprendere, controllare e ottimizzare le varie fasi del processo di accelerazione, per poter rendere possibili tali sviluppi. Recentemente, numerosi esperimenti hanno coinvolto bersagli dalle caratteristiche non convenzionali, in modo da migliorare le proprietà dei fasci di ioni generati: energia, numero di particelle, laminarità. Tra questi ultimi, vi sono bersagli costituiti da un substrato solido e da un film nanostrutturato di bassissima densità. L'utilizzo di tali bersagli, prodotti grazie a tecniche tipiche della scienza dei materiali, ha mostrato un aumento dell'energia massima delle particelle accelerate e un incremento del loro numero; tuttavia emergono numerose problematiche legate alla produzione e caratterizzazione dei film e alla comprensione del fenomeno.

E' in questo contesto che si inserisce il lavoro di tesi, che ha i seguenti obiettivi principali:

- supporto nella produzione di bersagli multistrato presso il laboratorio di Materiali Micro- e Nanostrutturati (NanoLab) del Politecnico di Milano, per la realizzazione di esperimenti di accelerazione di ioni, effettuati con la collaborazione dell'istituto del *Centre of Relativistic Laser Science* (CoReLS), in Corea del Sud.
- sviluppo di tecniche accurate per la caratterizzazione di film sottili di bassissima densità.
- analisi preliminare dei dati relativi agli ioni generati dall'irraggiamento dei campioni prodotti, tramite un *software* realizzato in occasione di questo lavoro di tesi.

La tesi è così strutturata: il primo capitolo introduce gli aspetti fondamentali per la comprensione del fenomeno di accelerazione derivante dall'interazione di impulsi laser con ber-

sagli solidi e riassume gli sviluppi effettuati negli ultimi anni, finalizzati all'ottimizzazione del meccanismo.

Il secondo capitolo descrive le tecniche della scienza dei materiali usate per la produzione e caratterizzazione di film nanostrutturati utilizzati in questo campo; inoltre vengono descritte le tecniche di diagnostica di ioni generati, di cui si fa maggior uso.

Nel terzo capitolo, che rappresenta l'approfondimento da me svolto per l'ASPRI, vengono sviluppati alcuni miglioramenti per la tecnica basata su *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (EDXS) per la misura di spessore massico di film sottili, a cui si ricorre per determinare con maggiore accuratezza la densità dei film nanostrutturati usati per ottimizzare il processo di accelerazione.

Nel quarto capitolo, infine, viene presentata l'attività sperimentale volta alla realizzazione di esperimenti di generazione di ioni; si descrive dunque la fase di produzione e caratterizzazione dei campioni irraggiati, a cui segue un'analisi preliminare dei risultati ottenuti, effettuata tramite il nuovo *software* sopracitato.

Capitolo 1

Introduzione all'accelerazione di ioni mediante laser superintensi

1.1 Impulsi laser superintensi e ultrabrevi

L'invenzione del laser, risalente agli anni '60 del secolo scorso, fu una scoperta di fondamentale importanza in quanto permise di ottenere radiazione elettromagnetica con proprietà uniche, quali ad esempio la monocromaticità (cioè la radiazione è caratterizzata da uno spettro energetico quasi monocromatico) e la coerenza spaziale e temporale (cioè i campi associati alla radiazione sono in fase e si propagano in una direzione privilegiata).

Fin dalla realizzazione del primo laser, uno dei più rilevanti obiettivi della tecnologia è stato diminuire la durata temporale dell'impulso: infatti, fin dal XIX secolo, impulsi di luce di breve durata sono stati usati per osservare l'evoluzione temporale di eventi molto rapidi, quali la dinamica di molecole, atomi, elettroni. In generale è possibile affermare che, per misurare un processo fisico molto veloce, è necessario utilizzare una sorgente adeguata, cioè tale che la sua durata temporale sia confrontabile oppure inferiore all'evento stesso. Ad esempio, anche prima della scoperta del laser, nel 1866 il fisico tedesco August Töpler (1836-1912) fu in grado di fotografare le variazioni di pressione dell'aria, in onde acustiche, con un *flash* della durata di microsecondi. E' dunque di notevole interesse sviluppare sorgenti di brevissima durata.

L'evoluzione della tecnologia per la generazione di impulsi di breve durata fu inizialmente molto veloce: nei tre decenni successivi all'invenzione del laser si passò dai 10 picosecondi del 1966 ai 4.8 femtosecondi del 1999 [1]. La tecnica utilizzata per la produzione di impulsi ultrabrevi è chiamata *mode-locking*: la distribuzione spaziale stazionaria del campo elettromagnetico in un laser, costituito da due specchi piani o curvi (che racchiudono un mezzo attivo), si può rappresentare in termini di modi, caratterizzati ognuno

da una frequenza propria di oscillazione. Nel caso in cui un laser oscilli su molti modi, la radiazione in uscita ha un andamento molto irregolare nel tempo, perché solitamente i vari modi non oscillano contemporaneamente e le fasi sono fra loro scorrelate. Attraverso opportuni meccanismi, è possibile far oscillare questi modi contemporaneamente e rendere le fasi correlate (da qui il nome *mode-locking*), in modo da ottenere un fenomeno di fondamentale importanza: i diversi modi interferiscono tra loro per formare impulsi di breve durata.

Essa è determinata dalla larghezza di banda di guadagno del mezzo attivo (misurata in nm o in Hz in base alla famosa relazione tra lunghezza d'onda e frequenza, $\lambda f = c$); più sono numerosi i modi presenti nella cavità risonante, più breve può essere la durata dell'impulso. Ad esempio nel caso di laser a gas, dove la larghezza di banda è inferiore, l'impulso sarà più lungo, sopra le centinaia di ps , mentre per laser a stato solido o semiconduttore si possono ottenere impulsi di decine di fs . Ad esempio per laser a stato solido Nd:YAG la larghezza di banda di guadagno è di circa $1 nm$, mentre per il laser a Ti:sapphire la larghezza è di circa $100 nm$, il che permette di ottenere impulsi di decine di fs e 100 volte più brevi rispetto al Nd:YAG.

Il limite inferiore alla durata di un impulso laser è dato dal periodo del ciclo ottico del corrispondente campo elettrico: la durata minima di un impulso nella regione spettrale del visibile (cioè con lunghezza d'onda compresa fra $400 nm$ e $700 nm$) è pertanto limitata a circa $2 fs$. È quindi chiaro che per superare la barriera del femtosecondo è indispensabile generare impulsi nella regione spettrale dell'ultravioletto estremo (XUV, $10-100 nm$) o dei raggi X molli ($0.1-10 nm$). Ad esempio il ciclo ottico di un'onda con lunghezza d'onda di $15 nm$ è pari a 50 attosecondi. La tecnica che viene comunemente utilizzata per la produzione di impulsi nella regione spettrale dell'XUV, è denominata generazione di armoniche di ordine elevato e si basa su effetti non lineari, che avvengono negli atomi di un gas investito da impulsi laser brevi e intensi (fs , $> 10^{14} W/cm^2$). Attualmente, grazie a questa tecnologia, si possono produrre impulsi di durata inferiore ai 100 attosecondi, dove la durata dell'impulso in questo caso diventa paragonabile al periodo di oscillazione del campo elettrico e si parla di impulsi da pochi cicli ottici.

Un altro importante obiettivo, perseguito fin dai primi anni della nascita della scienza e tecnologia dei laser, è stato aumentare l'intensità di picco dell'impulso (espressa tipicamente in W/cm^2), poichè da essa dipende il valore del campo elettrico \mathbf{E} dell'onda, secondo la formula $|\mathbf{E}| = \sqrt{2I/n^2\epsilon_0}$. L'intensità media di un impulso si può calcolare con la semplice relazione:

$$I = \frac{E_l}{\tau_l A_f} \quad (1.1)$$

Dove E_l è l'energia dell'impulso, τ_l la durata misurata al 50% dell'intensità (*Full Width Half Maximum*, FWHM) e A_f il *focal spot* misurato al FWHM.

Come si evince dalla relazione 1.1, per ottenere intensità elevate è utile focalizzare l'impulso in un'area ridotta grazie all'utilizzo di ottiche. Tuttavia l'area di focalizzazione ha un limite teorico dato dal quadrato della lunghezza d'onda del laser. Per questo motivo l'intensità di impulso può essere ulteriormente incrementata, solo aumentando l'energia dell'impulso e/o riducendone la durata. Inizialmente ciò è stato fatto con le tecniche di *Q-switching* e *mode-locking* che hanno permesso di ottenere impulsi con τ_l rispettivamente di *ns* e *fs*, con E_l di centinaia di *J* e decine di *mJ* e con intensità fino ai 10^{14} W/cm^2 .

Dopo un periodo di stallo, durante la metà degli anni '80 (vedi figura 1.1), l'intensità dei laser è stata nuovamente incrementata di diversi ordini di grandezza grazie allo sviluppo della tecnica *Chirped Pulse Amplification* (CPA), il cui principio di funzionamento è illustrato in figura 1.2. La CPA, allo stato odierno di tecnologia, permette di ottene-

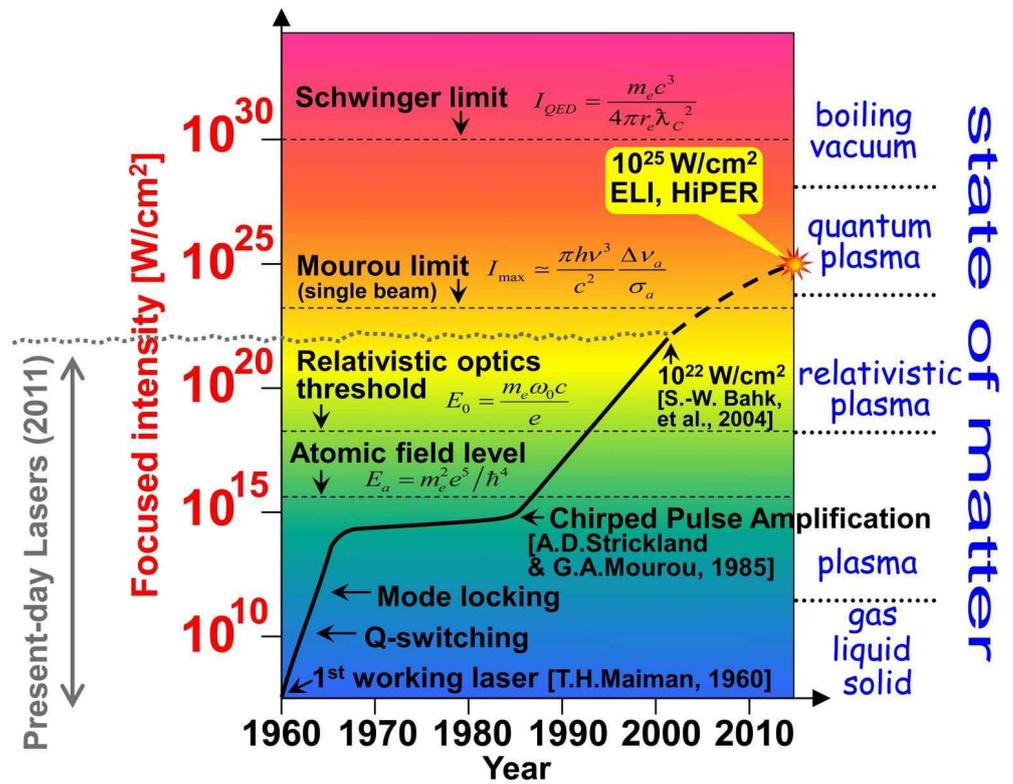


Figura 1.1: Storia della crescita dell'intensità di picco dei laser e relativi regimi di interazione con la materia.

re impulsi ultrabrevi fino a circa 30 fs , potenza anche superiore alle centinaia di *TW* e intensità oltre i 10^{20} W/cm^2 . Per ottenere questi parametri, viene creato un impulso breve e poco energetico da un oscillatore *standard* (ad esempio Ti:Sapphire o Nd:YAG in

regime di *mode-locking* della durata rispettivamente di decine e centinaia di fs e di energia nell'ordine dei nJ e μJ ; l'impulso ultrabreve viene inizialmente allungato mediante un cristallo (*grating*) che separa le componenti spettrali, grazie alla legge $d\sin(\theta_m) = m\lambda$, le quali percorrono un diverso cammino ottico, causando l'aumento di durata temporale dell'impulso (*pulse stretcher*). Questo viene fatto per ridurre la potenza del laser, che in assenza del *pulse stretcher* danneggerebbe le ottiche e porterebbe all'insorgere di indesiderati effetti non-lineari (quale la formazione di plasma in aria). Dopo questo processo l'impulso viene fatto passare attraverso diversi *stage* di amplificazione, composti da un mezzo attivo e i rispettivi sistemi di pompaggio (ad esempio lampade a *flash*), che ne incrementano l'energia di diversi ordini di grandezza (fino all'ordine delle decine di J per i sistemi Ti:sapphire e centinaia di J per Nd:YAG) e successivamente compresso temporalmente nuovamente da un altro *grating*, in modo tale da raggiungere potenze finali che possono superare le centinaia di TW .

Infine il fascio viene focalizzato, raggiungendo le intensità desiderate, mediante lenti paraboliche montate all'interno di una camera a vuoto; infatti, se la focalizzazione avvenisse in aria, porterebbe all'immediata formazione di plasma con la perdita delle qualità del fascio.

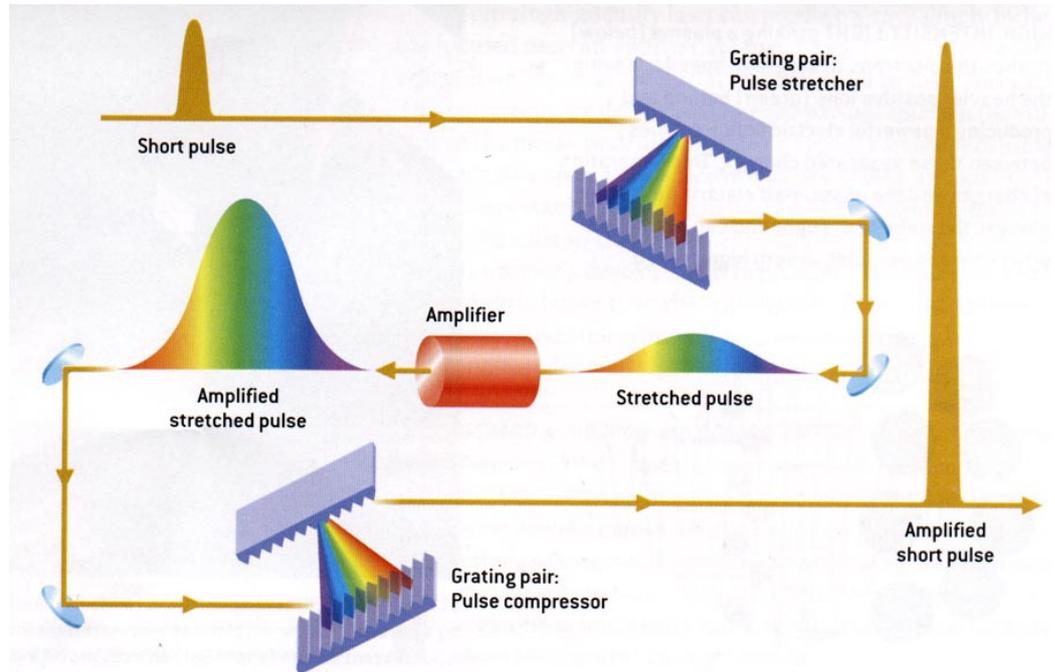


Figura 1.2: Schema di funzionamento della CPA.

Le applicazioni di laser ad alta intensità spaziano in diversi campi della fisica e dell'ingegneria. Alcuni esempi sono:

- **Applicazioni energetiche:** l'uso di sistemi laser ad alta potenza viene usato nelle ricerche di fusione nucleare inerziale. Diversi fasci laser intensi ad alta potenza (10^{14} W/cm^2 , 1 PW) vengono focalizzati su una piccola sfera di deuterio e trizio (o su un *hohlraum*) che collassa per effetto razzo e porta il combustibile a pressioni tali da innescare reazioni di fusione nucleare.
- **Fisica di base:** il processo di interazione tra laser superintensi e la materia è di notevole complessità e grande interesse per lo studio di base. Ad esempio in futuro si raggiungeranno intensità fino ai 10^{30} W/cm^2 , dove i campi associati alla radiazione saranno talmente elevati da studiare la fisica di base di processi di elettrodinamica quantistica (QED) non-lineare, come il *breakdown* del vuoto, dove vengono creati due fotoni a partire da particelle virtuali.
- **Produzione di fasci di particelle cariche e di raggi X:** grazie all'interazione laser-plasma in regimi non-lineari si possono ottenere sistemi *table-top* per la produzione di fasci di particelle cariche energetiche quali elettroni (*Laser Wake-Field Acceleration*) o ioni (questa tecnica verrà descritta più approfonditamente nei seguenti paragrafi). Inoltre è possibile ottenere sorgenti di raggi X ad alta energia (30 – 60 *keV*) ed alta brillantezza (10^7 fotoni/mm^2) utilizzabili nella diagnostica medica o nella scienza dei materiali.

In vista di questi interessi, in tutto il mondo sono stati costruite sorgenti laser superintense; come si osserva da figura 1.3, in Europa il numero di laboratori dotati di sorgenti ad alta intensità si è moltiplicato in pochi anni, dal 2006 al 2010. Nello specifico, in questo lavoro di tesi è stato utilizzato il laser del CoReLS, in Corea del Sud, che supera il *PW* di potenza di picco, con impulsi di 30 *fs* e intensità di picco di $7 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$ [2]. Un altro esempio di particolare interesse per l'Europa, è l'*Extreme Light Infrastructure* (ELI) [3], che sarà operativo nel 2018 e che sarà la prima infrastruttura di ricerca internazionale, con sede in Repubblica Ceca, Ungheria e Romania, con numerosi laser ad alta potenza (decine di *PW*) per l'esplorazione di numerose tematiche scientifiche e tecnologiche.

1.2 Interazione di impulsi laser superintensi con la materia

Come accennato nel paragrafo precedente l'interazione di impulsi laser superintensi con la materia è un aspetto di grande interesse e grande complessità in quanto in essa si sommano numerosi processi fisici, come gli effetti relativistici o gli effetti non-lineari, indotti dall'elevata intensità. In seguito verrà quindi data una descrizione qualitativa dei principali processi di interazione radiazione-materia che sono necessari per poter comprendere i ca-

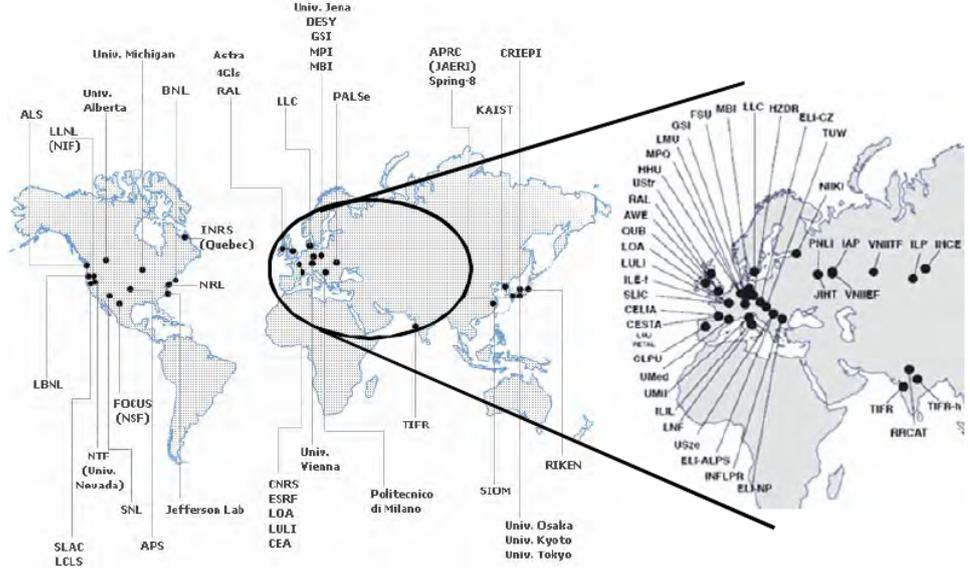


Figura 1.3: Mappa mondiale di sistemi laser ad alta intensità (oltre i 100 TW di picco) nel 2006 (a sinistra); è mostrato l'avanzamento dopo pochi anni, nel 2010, in Europa, Russia e India (a destra). Preso da *International Committee on Ultra-High Intensity Lasers* [4].

pitoli successivi, senza la pretesa di esaurire l'argomento. Per una descrizione dettagliata si rimanda al libro di Gibbon [5].

Consideriamo inizialmente l'interazione di un impulso di elevata intensità ($> 10^{14} \text{W/cm}^2$) con la materia. Il primo effetto è quello di ionizzazione e di formazione di un plasma, in quanto le soglie di ionizzazione più tipiche non eccedono i 10^{14}W/cm^2 ; essa è dovuta a effetti multifotoni, a effetto tunnel della buca di potenziale o a collisione con elettroni veloci (accelerati dall'impulso), infatti l'energia di un singolo fotone di luce laser non è sufficiente a ionizzare un atomo.

I processi seguenti comportano dunque l'interazione tra laser e plasma, perciò è necessario introdurre il processo di propagazione di un'onda elettromagnetica in un plasma: utilizzando una descrizione fluida possiamo ottenere una relazione tra il vettore d'onda k e la frequenza dell'onda ω (relazione di dispersione), valida in regime lineare:

$$\omega^2 = k^2 c^2 + \omega_{pe}^2, \quad \omega_{pe} = \sqrt{\frac{4\pi n_e e^2}{m_e}} \quad (1.2)$$

dove ω_{pe} è detta frequenza di plasma elettronica ed è un parametro dipendente dalle proprietà del plasma; la relazione mostra che un'onda elettromagnetica con frequenza inferiore alla frequenza di plasma elettronica non può propagare nel mezzo e viene in parte riflessa e in parte assorbita con un andamento esponenziale di lunghezza caratteristica $L = c\sqrt{\omega_{pe}^2 - \omega^2}$, detta lunghezza di pelle. Considerando l'interazione con un laser, di

frequenza nota, si può invertire l'equazione e ottenere un valore di densità, detta critica, sopra cui l'impulso non può propagare:

$$n_c = \frac{m_e \omega^2}{4\pi e} \quad (1.3)$$

Si distinguono dunque due regimi di interazione, detti sovradenso e sottodenso (nel primo caso l'onda non si propaga, mentre nel secondo l'onda penetra nel plasma).

Questi effetti sono stati osservati grazie alle tecniche di *Q-switching* e *mode-locking*, in quanto hanno permesso di raggiungere intensità di picco fino ai 10^{14} W/cm^2 ; oltre agli effetti appena descritti, questi valori di intensità hanno permesso la scoperta di effetti ottici non-lineari, quali lo scattering Raman non-lineare, lo scattering Brillouin. La ragione per cui si è aperta questa nuova regione dell'ottica è stata che il campo elettrico del laser è diventato comparabile al campo elettrico atomico, per cui la risposta di un atomo al campo di un laser è diventata dipendente in maniera non-lineare dall'intensità del laser. A partire dagli anni '80, grazie alla CPA, si sono aperti ulteriori campi dell'interazione radiazione-materia: gli elettroni, sottoposti ai campi di luce così intensa, possono raggiungere velocità relativistiche e dunque è necessaria una trattazione relativistica del problema, la quale aggiunge ulteriore complessità agli effetti non-lineari.

Ad esempio, introducendo gli effetti relativistici nella descrizione dell'interazione laser-plasma, il regime sottodenso si estende: rispetto all'equazione 1.2 che descrive un plasma classico, si introduce nella relazione di dispersione il fattore di Lorentz $\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-v^2/c^2}}$:

$$n_c = \gamma \frac{m_e \omega^2}{4\pi e} \quad (1.4)$$

Poichè vale che $\gamma \simeq \sqrt{\mathbf{a}^2 + 1} - 1$, dove $\mathbf{a} = \frac{q\mathbf{A}}{mc^2}$ è il potenziale vettore adimensionale dell'onda (che dipende dall'intensità dell'impulso), γ è sempre maggiore di uno e dunque esiste un *range* di frequenze dell'onda che non potrebbero propagarsi in un plasma trattato classicamente, mentre possono propagarsi nel caso relativistico; questo fenomeno viene chiamato trasparenza relativistica indotta.

Se consideriamo il regime sottodenso (che si ottiene generalmente nell'interazione di laser con gas) un impulso può propagare, ma se è sufficientemente intenso ($\mathbf{a} \geq 1$), esso innesca fenomeni non-lineari. La forza ponderomotiva è un esempio rilevante di effetti di questo tipo; essa ha la forma:

$$\mathbf{F}_p = -\frac{e^2}{2m\omega^2} \nabla \mathbf{E}^2 = -mc^2 \nabla (\sqrt{\mathbf{a}^2 + 1} - 1) \quad (1.5)$$

l'espressione si può ottenere studiando la dinamica al secondo ordine (per questo motivo si osserva ad alta intensità) di una particella singola esposta a un'onda elettromagnetica con profilo spaziale e temporale lentamente variabile; essa agisce su particelle cariche e ha verso lungo il gradiente del profilo spaziale dell'onda (vedi figura 1.4). Poichè è inversamente

proporzionale alla massa della particella, essa si esercita, nei tempi caratteristici propri dell'interazione con impulsi ultrabrevi (fs), solo sugli elettroni, mentre gli ioni ne sono poco affetti e possono essere considerati immobili. Inoltre si osserva dal membro di destra della relazione 1.5 che la forza ponderomotiva corrisponde all'energia del campo elettrico del laser nel vuoto, mediata sul ciclo.

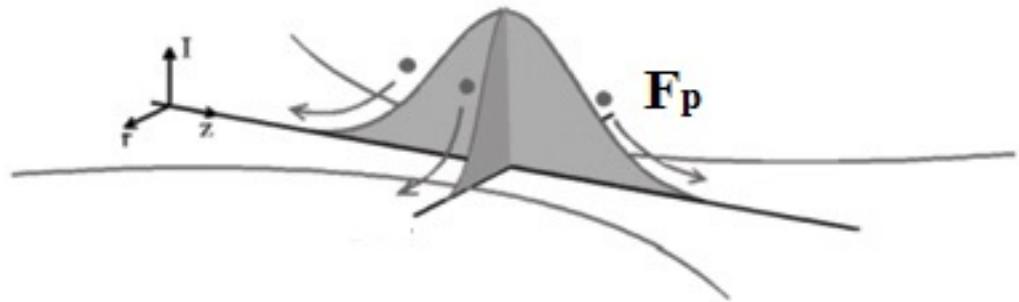
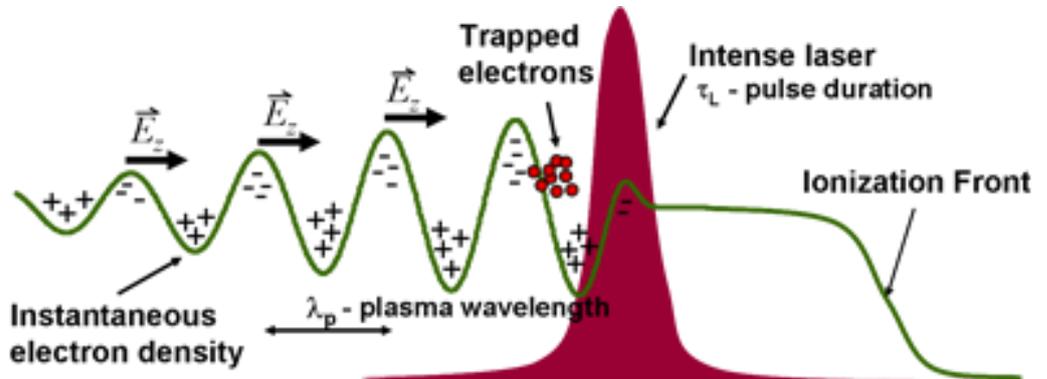
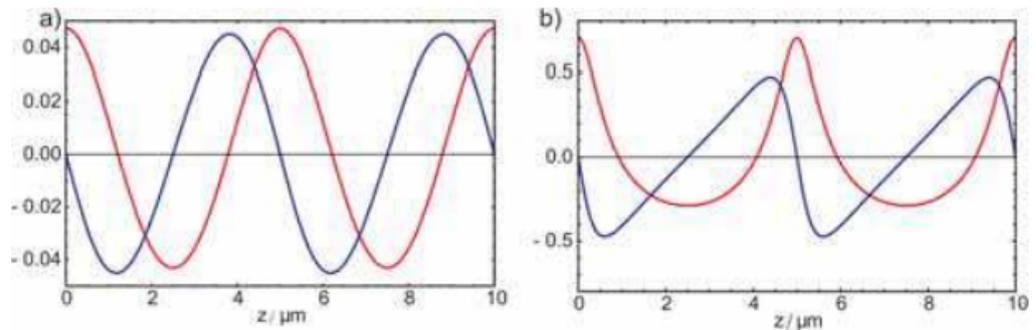


Figura 1.4: Rappresentazione schematica della forza ponderomotiva generata da un impulso di alta intensità.

Durante la propagazione dell'impulso la forza ponderomotiva permette di creare zone a più alta concentrazione di elettroni e zone a più bassa, questo si traduce in un'onda di plasma longitudinale che si forma al passare dell'impulso, chiamata *wake wave* (onda di scia); questo effetto è alla base del processo di accelerazione di elettroni chiamato *Laser Wake-Field Acceleration*, in quanto l'onda di plasma genera un campo elettrico longitudinale che, se in fase, può accelerare un *bunch* di elettroni (vedi figura 1.5). Inoltre se l'impulso ha durata pari alla metà del periodo delle oscillazioni di plasma, si innesca un'eccitazione ponderomotiva risonante, dove l'onda di densità elettronica del plasma assume un aspetto a picchi e il campo elettrico assume una forma a dente di sega (vedi figura 1.6); in questo caso se il campo elettrico è maggiore del limite relativistico di *wave-breaking* la struttura periodica viene persa con la formazione di bolle e il trasferimento efficace di energia dall'impulso al plasma, formando *bunch* di elettroni ad alta energia.

Gli effetti relativistici insieme alla forza ponderomotiva possono dar luogo ad un altro effetto di particolare interesse: l'auto focalizzazione relativistica. Poiché l'indice di rifrazione del mezzo dipende linearmente, in prima approssimazione, da \mathbf{a} e da n_e^{-1} , l'indice di rifrazione lungo la propagazione del laser aumenta e questo porta a un effetto di focalizzazione per effetto guida d'onda.

Se invece consideriamo l'interazione di un laser superintenso con un bersaglio solido, ricadiamo nel regime di interazione sovradenso: il plasma, che si forma per ionizzazione del materiale, presenta un gradiente di densità tale da impedire la propagazione dell'impulso


 Figura 1.5: Rappresentazione schematica della *Laser Wake Field Acceleration* LWFA.

 Figura 1.6: Perturbazione della densità elettronica $\delta e/n_e$, in rosso, e campo elettrico longitudinale normalizzato E_{wake}/E_p , in blu; (a) per bassa intensità, $a = 0.3$, (b) per intensità elevata, $a = 1$.

oltre la lunghezza di pelle (nell'ordine dei nm); questa condizione permette al laser di accelerare elettroni ad energie nell'ordine dei keV fino ai MeV . Gli effetti che danno origine a questi elettroni veloci (*hot electrons*) sono molteplici e i meccanismi diventano dominanti in funzione dell'intensità:

- Per intensità comprese tra 10^{12} e $10^{17} W/cm^2$ il regime è non-relativistico e i processi dominanti sono l'assorbimento Bremsstrahlung inverso e l'assorbimento risonante. Generalmente questi meccanismi sono innescati dal pre-impulso (componente iniziale dell'impulso a intensità molto inferiore a quella di picco, vedi paragrafo 1.4.1) nel caso in cui il rapporto di contrasto non sia sufficientemente alto. L'assorbimento Bremsstrahlung inverso è un meccanismo di tipo collisionale, cioè gli elettroni accelerati dall'onda trasmettono energia agli ioni tramite collisioni coulombiane, tuttavia la frequenza di queste collisioni tende a 0 con l'aumentare della temperatura elettronica. L'assorbimento risonante invece avviene quando è presente un gradiente di

densità sufficientemente basso (con variazione di densità su lunghezze nell'ordine del μm), per impulsi lunghi (sopra il ps), quando l'onda incontra il punto del plasma in cui la densità è pari alla densità critica e trasferisce energia al plasma, eccitando onde alla frequenza di plasma (vedi figura 1.7).

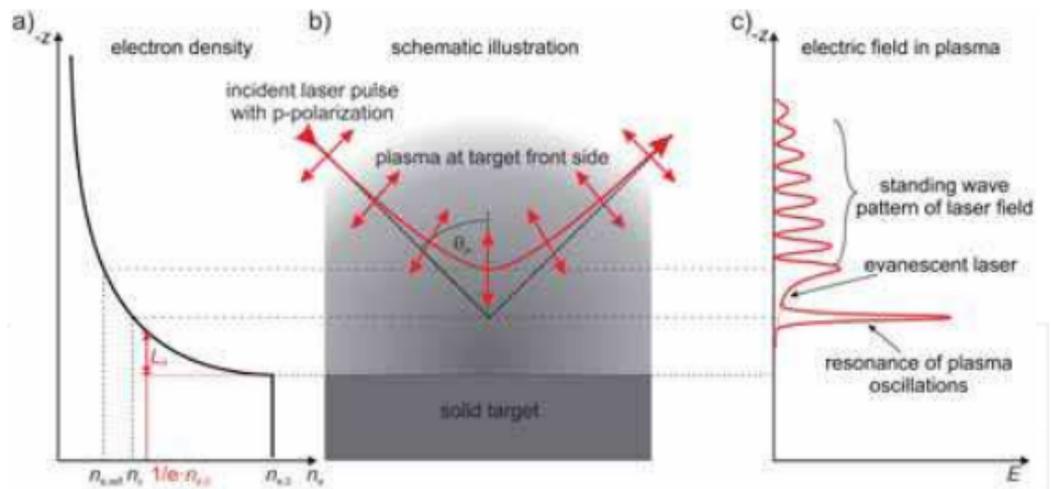


Figura 1.7: Schema di assorbimento risonante; un'onda polarizzata P incide non perpendicolare in un plasma con un gradiente di densità esponenziale. L'onda propaga fino al punto in cui $n = n_c \cos(\theta)$, dove viene riflessa; una parte di essa può arrivare, come onda evanescente, al punto in cui la densità è critica e dar luogo ad assorbimento risonante.

- Per intensità superiori a 10^{18} W/cm^2 diventano dominanti altri meccanismi come l'effetto Brunel (o *vacuum heating*) e il *relativistic $J \times B$ heating*. Nell'effetto Brunel le condizioni per cui possono essere generati elettroni veloci sono: polarizzazione lineare P (campo elettrico parallelo al piano di incidenza), angolo di incidenza diverso da 0, plasma sovradensito. In queste condizioni il campo elettrico possiede una componente longitudinale all'interfaccia vuoto-plasma e, se sufficientemente intenso, può strappare elettroni dal plasma che, dopo un emiperiodo, vengono ri-iniettati nel plasma con una velocità di circa $eE/m\omega$; poichè il plasma è sovradensito, al suo interno il campo elettrico è fortemente smorzato e non è in grado di esercitare una forza di richiamo sugli elettroni che dunque sono emessi longitudinalmente nel plasma. Nel caso in cui la polarizzazione sia S (campo elettrico perpendicolare al piano di incidenza), oppure l'incidenza normale, non esiste una componente di campo elettrica normale all'interfaccia, per cui diventa dominante un altro fenomeno, il *relativistic $J \times B$ heating*. Il funzionamento è simile al *vacuum heating*, dove la forza dominante è però data dalla componente magnetica della forza di Lorentz.

Quando invece il laser interagisce con bersagli solidi di densità vicina a quella critica, ci si aspettano fenomeni che caratterizzano sia il regime sovradenso che sottodenso, come ad esempio la trasparenza relativistica indotta e il *wave-breaking*, introducendo una difficoltà maggiore nella descrizione del processo. Questo regime di interazione è di particolare importanza per questo lavoro di tesi in quanto sono stati fabbricati bersagli solidi di densità di poco superiore a quella critica, studiati in modo da incrementare il processo di accelerazione di ioni dato da interazione laser-plasma. Infatti uno degli effetti dei laser superintensi è il processo di generazione di fasci di ioni energetici, descritto in dettaglio nel prossimo paragrafo.

1.3 Accelerazione di ioni mediante interazione di impulsi laser superintensi con bersagli solidi

1.3.1 Osservazioni sperimentali e potenziali applicazioni

Nell'anno 2000 tre esperimenti hanno riportato, indipendentemente, l'osservazione di pacchetti di protoni energetici (superiori al MeV) ottenuti dall'interazione di laser superintensi con fogli micrometrici metallici o plastici (Clark et al. [6]; Maksimchuk et al. [7]; Snavely et al. [8]) (vedi figura 1.8). I *bunch* possedevano le seguenti proprietà: elevato numero di particelle emesse lungo la normale ($> 10^9$), alta laminarità del fascio (bassa emittanza trasversale, pari a 0.004 mm mrad , di 100 volte inferiore ai tipici acceleratori RF, e longitudinale, i *bunch* hanno durata di ps), spettro energetico continuo di forma esponenziale con energie massime rispettivamente di 18, 1.5 e 58 MeV . Queste evidenze sperimentali hanno subito suscitato l'interesse scientifico internazionale nello studio fondamentale del processo in quanto coinvolge campi elevati ed effetti relativistici; inoltre una forte attrattiva è data dalle possibili applicazioni di sorgenti di ioni compatte ed economiche, infatti gli acceleratori di particelle convenzionali hanno dimensioni considerevoli e comportano un grande dispendio di risorse. In particolare acceleratori di ioni *table-top* potrebbero essere usati per:

- **Produzione di radioisotopi:** attraverso reazioni nucleari si producono radioisotopi usati nel campo della medicina nucleare, sia per le tecniche diagnostiche, come la *Positron Emission Tomography* (PET), che per le tecniche di radioterapia.
- **Fusione Nucleare Inerziale Veloce:** rispetto alla Fusione Nucleare Inerziale classica, questa tecnica prevede l'utilizzo di fasci di ioni energetici, oltre a laser ad altra potenza, che trasferiscano energia direttamente al centro della sfera di combustibile permettendo l'innesco delle reazioni nucleari con una soglia energetica inferiore.

- **Proton Imaging:** fasci di protoni possono essere utilizzati come nuovi strumenti di diagnostica, permettendo radiografie di oggetti sottili, o per studiare la struttura dei campi elettrici in un plasma.
- **Adroterapia:** una tecnica radioterapica che sfrutta ioni carbonio o protoni; l'interesse particolare di questa tecnica risiede nella possibilità di concentrare la dose di radiazione in una limitata zona spaziale, massimizzando i danni alle cellule tumorali, preservando quelle sane. Questo può avvenire grazie al peculiare profilo di cessione d'energia delle particelle cariche pesanti, noto come picco di Bragg. Per questa tecnica sono necessari protoni di circa 250 MeV , che attualmente sono ottenuti mediante piccoli sincrotroni del diametro di circa 30 m , i quali necessitano di spazi adeguati e investimenti consistenti (ad es. il Centro Nazionale di Adroterapia Oncologica (CNAO) ha avuto costi di costruzione di 137 milioni di Euro [9]).

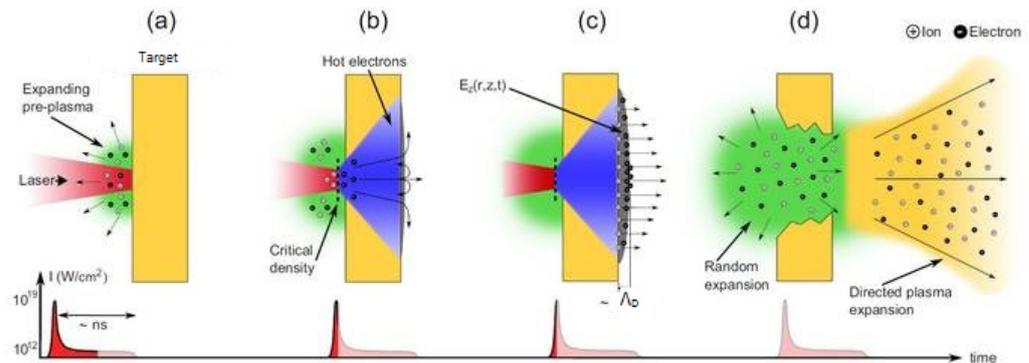


Figura 1.8: Schema di funzionamento della TNSA. In (a) il pre-impulso ionizza il target e il plasma inizia ad espandersi; in (b) l'impulso principale interagisce con il pre-plasma e genera elettroni caldi; in (c) gli elettroni caldi raggiungono la superficie opposta e formano una nuvola elettronica dell'ordine della lunghezza di Debye; in (d) l'impulso è esaurito e il target si rompe per esplosione Coulombiana, mentre gli ioni vengono accelerati lungo la normale al bersaglio, dalla nuvola elettronica.

1.3.2 Meccanismi di accelerazione: *Target Normal Sheath Acceleration* (TNSA)

L'interesse del mondo scientifico riguardo all'argomento ha anche suscitato un dibattito sull'origine del meccanismo di accelerazione [10], in particolar modo rispetto alla possibilità che il processo di accelerazione avvenisse all'interfaccia opposta a quella direttamente irradiata dal laser (*rear surface*) o all'interno del *target* stesso. Il dibattito è culminato

con l'elaborazione del modello di *Target Normal Sheath Acceleration* (TNSA) da parte di Wilks et al. [11]. Negli ultimi 15 anni sono stati esplorati anche altri meccanismi di accelerazione, di grande interesse per la possibilità di accelerare ioni mono-energetici (*Radiation Pressure Acceleration*, RPA) o per la più alta conversione di energia dal laser agli ioni accelerati. Tuttavia si è osservato che il meccanismo di TNSA è quello che si sviluppa più frequentemente e più naturalmente ed è in grado di descrivere la quasi totalità degli esperimenti finora effettuati. Poiché il lavoro di tesi si inquadra nelle ricerche in corso per incrementare le prestazioni del processo TNSA, esso verrà presentato mentre si rimanda a Macchi et al. [10] per una descrizione dettagliata degli altri meccanismi di accelerazione.

La TNSA può esser descritta schematicamente come visualizzato in figura 1.8: l'interazione di impulsi laser con bersagli solidi genera elettroni energetici, di temperatura T_e , emessi longitudinalmente verso la *rear surface*; se il bersaglio è sufficientemente sottile ($< 100\mu m$), gli elettroni, mediante complessi meccanismi di trasporto [12], possono raggiungere l'interfaccia opposta del bersaglio. Si forma dunque una nuvola di elettroni che si estende esternamente al bersaglio per diverse lunghezze di Debye ($\lambda_D = \sqrt{T_e/4\pi n_e e^2}$) e che dà luogo a campi elettrici estremamente intensi e quasi normali all'interfaccia. Sono dunque questi campi ad accelerare gli ioni presenti, determinando le proprietà descritte in precedenza.

Poiché la nuvola elettronica crea uno sbilanciamento di carica, essa genera un campo elettrico che richiama gli elettroni stessi confinandoli in una regione finita vicino alla *rear surface*; attraverso un bilancio energetico dell'energia degli elettroni con l'energia elettrostatica si può stimare l'ordine di grandezza del campo elettrico:

$$eE_z L_z \sim T_e \quad (1.6)$$

dove L_z è la lunghezza di estensione della nuvola elettronica. Per argomentazione puramente dimensionale possiamo stimare L_z con gli unici parametri del sistema che sono n_e , densità della nuvola, e T_e , la sua temperatura; otteniamo dunque $L_z \sim \lambda_D$ che è la lunghezza di Debye. Per quanto riguarda la temperatura elettronica, si può per semplicità assumere che sia determinabile da uno *scaling* ponderomotore (vedi paragrafo 1.2):

$$T_e \sim m_e c^2 (\gamma - 1) = m_e c^2 (\sqrt{1 + \mathbf{a}^2} - 1) \quad (1.7)$$

L'ampiezza adimensionale del potenziale vettore si può relazionare all'intensità del laser $\langle \mathbf{a}^2 \rangle = a_0^2/2 = 0.36 \left(\frac{I \lambda^2 [\mu m]}{10^{18} [W/cm^2]} \right)^2$, e dunque si ottiene:

$$T_e \sim m_e c^2 \cdot \left(\sqrt{1 + \frac{I \lambda^2 [\mu m]}{10^{18} [W/cm^2]}} - 1 \right) \quad (1.8)$$

cioè la temperatura degli elettroni caldi è proporzionale alla radice dell'irradianza del laser $I \lambda^2$. Prendendo un valore tipico ($I \lambda^2 = 10^{20} W/cm^2 \cdot \mu m^2$) si ottengono valori

di $T_e = 2.6 \text{ MeV}$ e assumendo un coefficiente di conversione di energia dell'impulso in elettroni veloci $\eta_e = 0.1$ possiamo ricavare una stima per la densità della nuvola di $n_e = 8 \cdot 10^{20} \text{ 1/cm}^3$ e ottenere $E_z = 6 \cdot 10^{10} \text{ V/cm}$ che si annulla nell'ordine della lunghezza di Debye $\lambda_D = 4.2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$; questo campo è in grado di trattenere gli elettroni veloci, di ionizzare l'interfaccia e iniziare ad accelerare gli ioni [11]. Un protone che venga accelerato da questo campo raggiunge un'energia $\varepsilon_p = eE_z L_z \sim T_e$, cioè di 2.6 MeV , risultato in linea con le osservazioni sperimentali. Si osserva che la dimensione su cui avviene l'accelerazione ($< \mu\text{m}$) è molto ridotta rispetto agli acceleratori convenzionali, che sfruttano campi RF molto meno intensi su dimensioni maggiori al m .

Si ottiene dunque una rozza stima dell'energia massima degli ioni accelerati; inoltre con queste semplici considerazioni si giustifica la dipendenza dalla radice dell'irradianza che è uno degli *scaling* più evidenziati in letteratura [10][13]. Tuttavia esso non è l'unico andamento osservato (in figura 1.9 si osservano due diversi *scaling*), perchè il processo dipende in generale da numerosi parametri: l'energia, la durata, la lunghezza d'onda, l'intensità dell'impulso incidono sull'energia massima. Inoltre anche la geometria del *target* e la sua composizione determinano il processo.

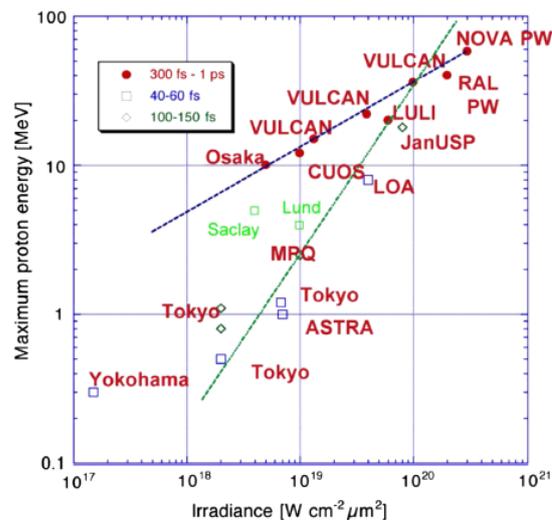


Figura 1.9: Energia massima di protoni in funzione dell'irradianza per diversi sistemi laser. Sono rappresentati due trend: per i sistemi con durata di impulso lunga (300-1000 fs) l'andamento segue la radice dell'irradianza, mentre per i sistemi con durata breve (30-60 fs) è evidenziato un andamento lineare. Da Borghesi et al. [13].

1.3.3 Modelli analitici per la TNSA

Per poter spiegare questo fenomeno più in dettaglio è necessario introdurre un modello teorico più elaborato del processo, che possa giustificare altre evidenze sperimentali, come lo spettro esponenziale degli ioni accelerati; in letteratura ne esistono di diversi tipi, ad esempio si può far uso dell'equazione di Vlasov per tener conto degli effetti cinetici del plasma oppure delle equazioni fluide quando si suppone una quasi-neutralità del plasma e si vuole analizzare la dinamica su ampi intervalli temporali (per una descrizione di questi modelli si rimanda a Macchi et al. [10]). Poichè il meccanismo di accelerazione si origina da una forte separazione di carica del plasma alla *rear surface*, si può risolvere il problema nell'ipotesi elettrostatica; questo modello viene chiamato quasi-statico e se ne descrive in seguito la forma più semplice.

Si assume con buona approssimazione che gli ioni del plasma siano immobili nella scala temporale del laser ($< \text{ps}$) a causa della loro elevata inerzia, infatti la dinamica degli ioni si svolge lungo scale temporali pari all'inverso della frequenza di plasma ionica ω_{pi}^{-1} , che per densità tipiche di un solido è di circa 100-1000 fs ; inoltre si ipotizza che gli ioni leggeri accelerati (protoni nella maggior parte dei casi) si trovino sulla *rear surface*, sotto forma di contaminanti, dove il campo generato dagli elettroni caldi è più intenso. Si assume inoltre che gli ioni accelerati siano pochi in numero in modo tale da non alterare il potenziale e da esser trattati come particelle test.

Secondo queste ipotesi si sfrutta l'approssimazione elettrostatica e si cerca la soluzione all'equazione di Poisson, per trovare il potenziale ϕ :

$$\nabla^2 \phi = 4\pi e \left(n_e - \sum_i n_i Z_i \right) \quad (1.9)$$

dove la sommatoria viene fatta su tutte le specie ioniche, con densità n_i e numero atomico Z_i . Il modello prevede per la popolazione elettronica due specie distinte: una popolazione calda n_h generata dall'interazione con il laser e una fredda n_c che non viene alterata dall'impulso, tali che $n_e = n_h + n_c$. Per la popolazione fredda si possono trascurare, nell'approccio più semplice, gli effetti termici, mentre per quella calda si assume una distribuzione di Boltzmann a una temperatura:

$$n_h = n_{0h} e^{E_k/T_h} \quad (1.10)$$

Quando la popolazione calda giunge al *rear side* esce da esso e tenta di fuggire generando un campo elettrostatico che esercita una forza di richiamo sugli elettroni stessi; il problema dunque si riduce a trovare il campo elettrico autoconsistente che porta a una situazione di equilibrio tra l'energia cinetica degli elettroni e la forza elettrica di richiamo:

$$n_h(x) = n_{0h} e^{e\phi/T_h} \quad (1.11)$$

In simmetria planare l'equazione da risolvere diventa:

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} = 4\pi e \left(n_{0h} e^{e\phi/T_h} + n_{0c} - n_{0H} Z_H \right) = 4\pi e n_{0h} \left(e^{e\phi/T_h} - H(-x) \right) \quad (1.12)$$

Dove il bersaglio è composto di ioni pesanti con numero atomico Z_H con un profilo di densità a gradino descritto dalla funzione di Heaviside $H(-x)$ (per $x > 0$ la densità è nulla, per $x < 0$ è uniforme).

La soluzione del potenziale autoconsistente è data, per $x > 0$, da [14]:

$$\phi(x) = \frac{-2T_h}{e} \left[\ln \left(1 + \frac{x}{\sqrt{2}e\lambda_{Dh}} \right) - 1 \right] \quad (1.13)$$

in cui compare in maniera esplicita la lunghezza di Debye degli elettroni caldi $\lambda_{Dh} = \sqrt{T_h/4\pi n_{0h}e^2}$ che determina il valore del campo elettrico; il cui valore massimo si trova all'interfaccia e si ottiene derivando il potenziale:

$$E_{max} = E(0) = \sqrt{\frac{2}{e}} \frac{T_h}{e\lambda_{Dh}} \quad (1.14)$$

dove è importante notare la distinzione tra e , numero di Nepero ed e , carica elementare. Il modello conferma quindi le stime per il campo elettrico fatte su considerazioni dimensionali; tuttavia questa descrizione ha un forte limite nel prevedere l'energia massima degli ioni accelerati, in quanto il potenziale diverge a $-\infty$, per $x \rightarrow \infty$, e l'energia di una particella test posta in $x = 0$ diverge a sua volta. Questa incongruenza è causata dal dominio del potenziale, che è semi-infinito, insieme al fatto che, secondo la distribuzione di Boltzmann, si hanno particelle con energia cinetica infinita.

Rimuovendo quest'ultima ipotesi e introducendo un'energia di *cut-off* per la popolazione di elettroni caldi, si può sorpassare il problema e si ottiene un potenziale che va a 0 in una distanza caratteristica $\sim \lambda_{Dh}$. In questo modo si trova una soluzione per il potenziale più realistica, come quella rappresentata in figura 1.10. Nonostante ciò si aggiunge un parametro ausiliario al sistema (l'energia di *cut-off*) per il quale sarebbe necessario un modello aggiuntivo; il problema viene sorpassato con il modello a elettroni intrappolati [15] che offre una descrizione autoconsistente: gli elettroni più energetici fuggono dal potenziale (quelli per cui $W = E_k - e\phi > 0$), mentre quelli meno energetici (che dunque possiedono un'energia massima $E_k = e\phi(0)$) formano un potenziale che si annulla in una distanza finita.

Grazie a questo modello si possono inoltre ottenere informazioni riguardo lo spettro degli ioni; assumendo che le impurezze che si trovano alla *rear surface* siano composte di Idrogeno (sotto forma di acqua), l'espressione della densità in funzione dello spazio sarà dunque:

$$n(x) = \frac{N_s}{\delta x} \cdot (H(x) - H(x - \delta x)) \quad (1.15)$$

dove N_s è la densità superficiale e δx lo spessore dello strato di Idrogeno. Il protone accelerato raggiungerà energie differenti in funzione della sua posizione di partenza, in

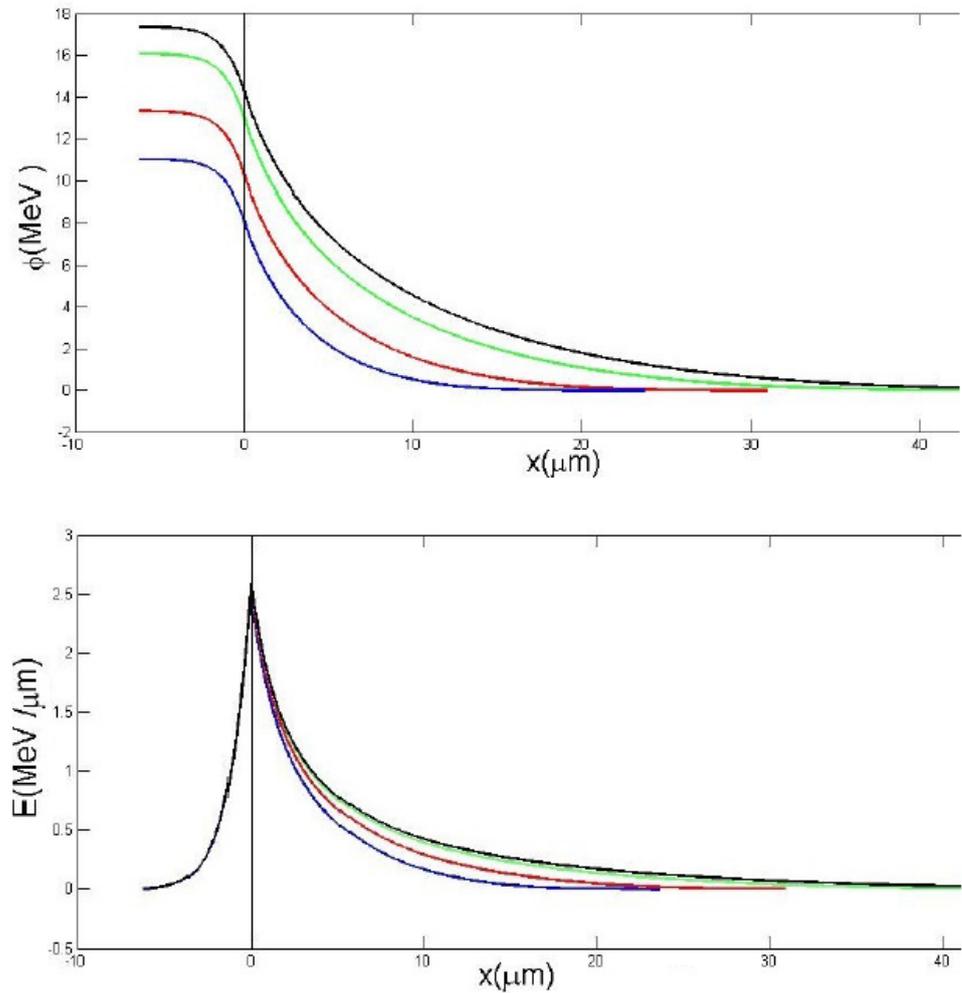


Figura 1.10: Potenziale e campo elettrico in funzione della coordinata x , ottenuti con irradianza $I\lambda^2 = 6.9 \cdot 10^{19} W/cm^2 \mu m^2$ ed energia di impulso $E_l = 0.2 J$ (linea blu) ; $0.5 J$ (linea rossa); $1.5 J$ (linea verde) ; $2.5 J$ (linea nera). Le curve sono state ottenute con il modello quasi-statico a elettroni intrappolati di Passoni et al. [15], con il quale si ottiene un potenziale va a 0 in una distanza finita. Da Cialfi [16]

quanto il potenziale accelerante varia molto con la posizione; imponendo la conservazione del volume nello spazio delle fasi si può ricavare un'espressione dello spettro energetico:

$$n(x)dx = n(\varepsilon)d\varepsilon, \quad \varepsilon = e(\phi(x) - \phi(+\infty)) \quad (1.16)$$

Utilizzando un'adeguata espressione per il potenziale possiamo trovare lo spettro energetico dei protoni; se ipotizziamo che vicino all'interfaccia il potenziale assuma un andamento simile a quello espresso in equazione 1.13 e che lo spessore delle impurezze di Idrogeno

sia sufficientemente piccolo $\delta x \ll \lambda_{Dh}$, ipotesi che si verifica nel modello a elettroni intrappolati, allora si ottiene:

$$n(\varepsilon) = \frac{n(x)}{d\varepsilon/dx} = \frac{n(x)\sqrt{2e}\lambda_{Dh} \left(1 + \frac{x}{\sqrt{2e}\lambda_{Dh}}\right)}{-2T_h} \quad (1.17)$$

Esprimendo x in funzione di ε si trova l'espressione dello spettro:

$$n(\varepsilon) = [H(\varepsilon - \varepsilon_0 - \delta\varepsilon) - H(\varepsilon - \varepsilon_0)] \frac{N_i \sqrt{2e}\lambda_{Dh}}{\delta x} \frac{e^{-\varepsilon/2T_h+1}}{2T_h} \quad (1.18)$$

Dove $\varepsilon_0 = e(\phi(0) - \phi(+\infty))$ è l'energia massima dei protoni accelerati. Si ottiene quindi una spiegazione della forma esponenziale continua dello spettro che è una delle evidenze sperimentali più importanti, osservate fin dai primi esperimenti (vedi figura 1.11).

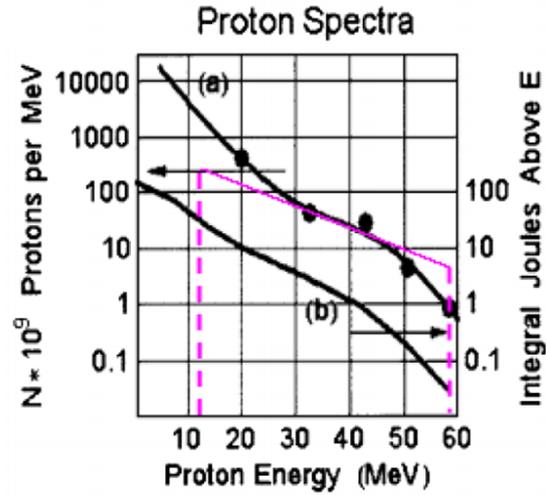


Figura 1.11: È mostrato lo spettro dei protoni accelerati, ottenuti da Snavely et al. [8] con i seguenti parametri laser: $I\lambda^2 = 2 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2 \mu\text{m}^2$, $E_l = 423 \text{ J}$, $\tau_l = 500 \text{ fs}$. Allo spettro sperimentale è sovrapposto lo spettro analitico ottenuto con il modello quasi-statico a elettroni intrappolati di Passoni et al. [15].

1.4 Sviluppi nel processo di accelerazione di ioni

1.4.1 Ottimizzazione dei parametri laser

Dalla prima osservazione, nel 2000, dell'accelerazione di ioni da interazione laser-plasma, il mondo scientifico ha esplorato il processo con numerosi esperimenti, simulazioni numeriche e modelli analitici. Fin dai primi esperimenti, tra gli obiettivi principali aumentare l'energia massima dei protoni è stata una priorità, in quanto per alcune applicazioni è necessaria

un'energia elevata (ad esempio per l'adroterapia sono necessari circa 250 MeV di protoni). Per raggiungere questo scopo, da un lato sono stati variati i parametri del laser al fine di determinarne il ruolo nel processo di accelerazione, dall'altra sono stati concepiti *target* innovativi che in base alla loro geometria, composizione, morfologia, struttura riuscissero a migliorare il processo di accelerazione.

I parametri caratteristici di un laser da tener presente in un esperimento di accelerazione laser-plasma sono numerosi e spesso non sono indipendenti; generalmente viene assegnata una parte decisiva all'intensità dell'impulso, poichè da essa dipende l'energia degli elettroni energetici, tuttavia l'influenza dell'energia, lunghezza d'onda, durata dell'impulso e contrasto, angolo di incidenza, polarizzazione non può essere trascurata. Un ruolo fondamentale è giocato da quest'ultima: come spiegato nel paragrafo 1.2, la generazione di elettroni veloci avviene più efficacemente, per intensità elevate, a causa dell'effetto Brunel ed esso è efficace solamente quando è presente una componente del campo elettrico lungo la normale alla superficie, cioè quando si è in presenza di incidenza obliqua e polarizzazione P. Il fenomeno di accelerazione di elettroni può avvenire anche in polarizzazione S, grazie alla componente magnetica della forza di Lorentz, denominato $J \times B$ heating. Mentre se il laser incide perpendicolarmente al bersaglio oppure se è in polarizzazione C, la generazione di elettroni caldi è fortemente inibita, con una netta diminuzione dell'energia massima degli ioni accelerati.

Riferendosi all'intensità di picco, negli anni la tecnologia dei laser ha compiuto diversi progressi aumentandone il valore. Innanzitutto bisogna distinguere due macrocategorie di sistemi: impulsi laser con tempo di impulso relativamente elevato ($300\text{-}1000 \text{ fs}$) ed elevata energia di impulso (centinaia di J) e laser con impulso ultrabreve ($30\text{-}50 \text{ fs}$) ed energia inferiore (fino a decine di J). La tecnologia di amplificazione dell'energia è simile per entrambe le categorie, in quanto si sfrutta la CPA, illustrata nel paragrafo 1.1; cambia invece il tipo di oscillatore usato per generare l'impulso iniziale. Infatti nel primo caso (impulso lungo) si usano laser a stato solido Nd:YAG (in alcuni casi anche a gas CO_2 , ma l'intensità è molto inferiore) con durate superiori ai 300 fs e frequenza di ripetizione molto bassa (pochi impulsi al giorno). Nel secondo caso si sfruttano laser a stato solido Ti:sapphire che, grazie alla elevata larghezza di banda di guadagno (vedi paragrafo 1.1), permettono di ottenere con la tecnica del *mode-locking* una durata d'impulso nell'ordine dei 30 fs , e una frequenza di ripetizione elevata (fino ai 10 Hz); tuttavia, a parità di intensità, l'energia ceduta al *target* è inferiore e di conseguenza sarà inferiore anche il numero di particelle accelerate.

Inizialmente gli esperimenti che permettevano di ottenere un'energia di particelle maggiore erano effettuati con laser a impulso lungo poichè la tecnologia era più avanzata e la fisica del processo più vantaggiosa, alle intensità che si potevano ottenere; negli ultimi anni invece, l'aumento di intensità di laser a basso tempo di impulso, ha permesso di ottenere

energie di protoni che si avvicinano a quelle dei sistemi a impulso lungo e con leggi di scala che sembrerebbero più promettenti. E' inoltre importante sottolineare che per l'applicazione futura di sorgenti di ioni energetici, un parametro di importanza fondamentale è la frequenza di ripetizione; infatti per la creazione di un fascio di particelle è necessario ripetere il processo di accelerazione diverse volte nell'unità di tempo, in modo che la corrente generata sia sufficientemente alta (per le applicazioni sono necessarie frequenze nell'ordine delle decine di Hz) e per questo motivo si esclude a priori la possibilità di usare sistemi a Nd:YAG per applicazioni che non siano quella della ricerca di base.

Nelle figure 1.12 e 1.13 sono stati raccolti i dati delle energie massime dei protoni accelerati in diversi laboratori; nella prima si sono raccolti i dati provenienti da laser con impulsi lunghi (300-1000 fs), nella seconda da laser con impulsi brevi (30-50 fs). Le energie sono espresse in funzione della potenza del laser (definita come $P_l = E_l/\tau_l$) e i dati sono interpolati da una legge di potenza. Si osserva che, nonostante le variazioni di target da un laboratorio all'altro e alle variazioni di tempo di impulso, le due macrocategorie sono descritte bene da una legge di potenza con diverso esponente; nel caso di impulsi lunghi l'andamento si avvicina alla radice quadrata della potenza, mentre nel caso di impulsi brevi è più vicino a un andamento lineare.

In base alla stime del paragrafo 1.3.2 si può dare una giustificazione dello *scaling* di *facility* laser a impulsi lunghi: l'energia massima scala con la radice dell'irradianza $I\lambda^2$ e di conseguenza con la radice della potenza, in quanto la lunghezza d'onda dei laser di diversi laboratori è simile ($\lambda \sim 1 \mu m$) mentre vale che $P_l = I \cdot A_f$ e il *focal spot* A_f non varia. Il motivo per cui si ha una diversa legge di scala per laser a impulsi ultrabrevi è ancora argomento di dibattito, dal momento che il processo è governato da diversi parametri non indipendenti e la dipendenza dell'energia massima non può essere espressa in funzione di un unico parametro come l'intensità. Ciò nonostante si può dare una spiegazione qualitativa del motivo di questa differenza: a parità di intensità l'energia dei laser a impulsi lunghi e di circa due ordini di grandezza maggiore, essa viene quindi convertita in un maggior numero di particelle accelerate e in un'energia massima più elevata.

Un altro parametro che influenza il processo è il rapporto di contrasto: esso è definito come $I_{pulse}/I_{prepulse}$ (a volte viene definito anche come l'inverso), dove il pre-impulso è dovuto all'amplificazione dell'emissione spontanea (ASE) e ha una durata generalmente oltre i ps . Esso diventa di fondamentale importanza per bersagli sub-micrometrici: per i *target* molto sottili (vedi figura 1.14), la presenza del pre-impulso inibisce il meccanismo di accelerazione [30] dato che induce la formazione di plasma e la sua conseguente espansione prima dell'arrivo dell'impulso principale. Infatti la presenza di un basso gradiente di densità all'interfaccia inibisce la generazione di elettroni caldi secondo l'effetto Brunel, inoltre se il plasma inizia ad espandersi anche alla superficie opposta, la lunghezza caratteristica L_s della relazione 1.6 non è pari a λ_D ma è data dalla lunghezza di espansione del plasma,

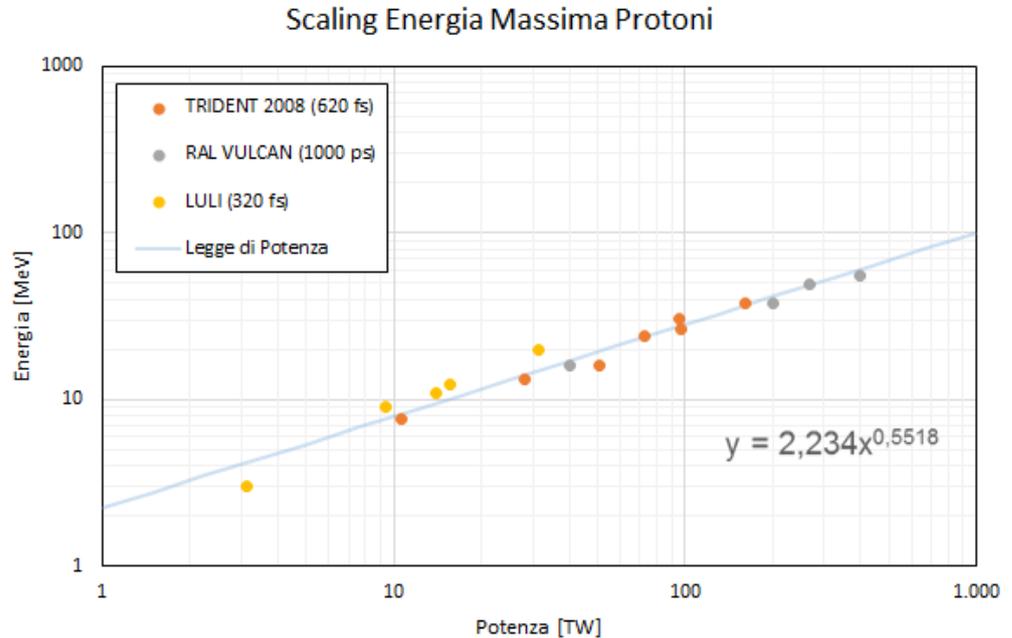


Figura 1.12: Sono mostrate le energie massime dei protoni accelerati in funzione della potenza per diversi laboratori. I dati sono stati raccolti da alcuni *scan* di intensità, ottenuti mantenendo costante la durata di impulso e variando l'energia, nei seguenti laboratori con i relativi bersagli: Trident 15 μm Al [17], Ral Vulcan 10 μm Al [18], Luli 20 μm Al [19].

per cui il campo elettrico accelerante e l'energia massima diminuiscono.

Dunque in letteratura viene sempre specificato il valore del rapporto di contrasto che, con la tecnologia odierna, può raggiungere valori molto elevati (*ultra-high contrast*), fino a 10^{12} . Generalmente vengono usati *Plasma Mirror* (PM) in serie; questi "specchi" hanno la capacità di variare le proprietà ottiche in tempi molto brevi, passando da completamente trasmissivi a completamente riflettenti, in modo da tagliare la prima parte dell'impulso. Il PM è composto da un substrato con un *coating* antiriflesso; quando viene focalizzato il laser su di esso, il materiale viene ionizzato e si forma un plasma sovradenso, che è completamente riflettente (vedi paragrafo 1.2). In questo processo parte dell'energia dell'impulso viene persa; se si considera anche la perdita di energia dovuta al *pulse compressor* della CPA, si ottengono fattori di trasmissione di energia vicini al 25%.

1.4.2 Bersagli convenzionali

Per quanto riguarda il bersaglio irraggiato, sono stati fatti diversi progressi rispetto ai primi tre esperimenti del 2000, dove il *target* era di dimensioni micrometriche e in due

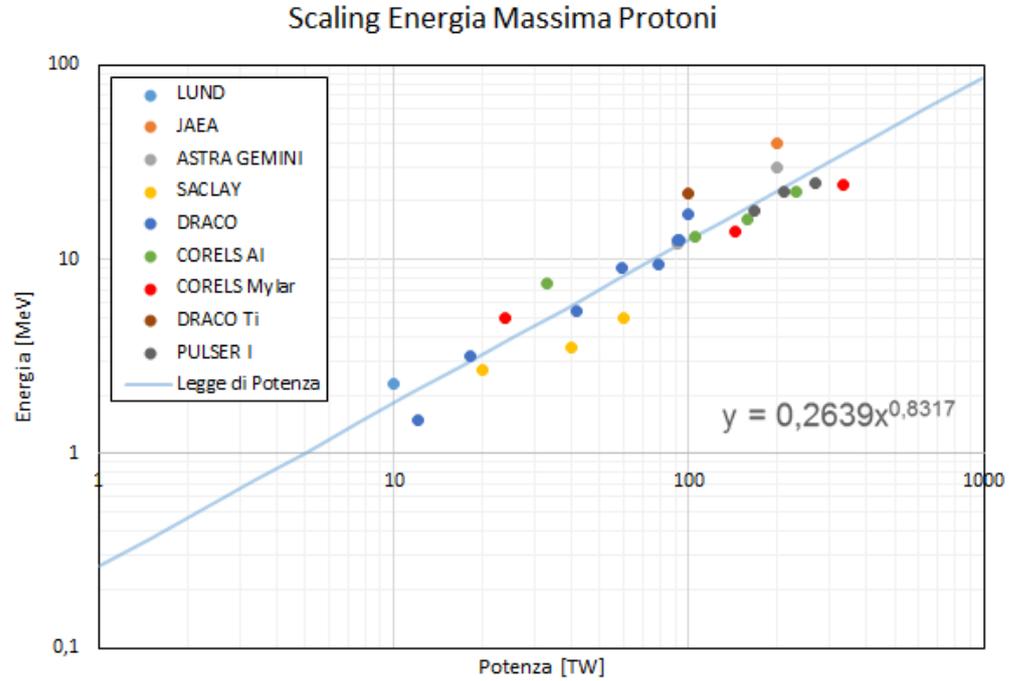


Figura 1.13: Sono mostrate le energie massime dei protoni accelerati in funzione della potenza per diversi laboratori. I dati sono stati raccolti da alcuni *scan* di intensità, ottenuti mantenendo costante la durata di impulso e variando l'energia, nei seguenti laboratori con i relativi bersagli: Saclay $1.5 \mu\text{m}$ Al [20], JAEA $0.8 \mu\text{m}$ Al [21], Lund Al [22], Astra Gemini $2 \mu\text{m}$ Al [23][24], Draco $3 \mu\text{m}$ Ti [25] $5 \mu\text{m}$ Al [26], Pulser I $0.05 \mu\text{m}$ polimero [27], CoReLs $0.75 \mu\text{m}$ Al [28] $0.7 \mu\text{m}$ Mylar [29].

casi composto da Alluminio ($125 \mu\text{m}$ Al [6], $5 \mu\text{m}$ Al [7]) e nell'altro caso da materiale plastico ($40 \mu\text{m}$ CH [8]). Inizialmente sono stati utilizzati altri elementi e si è visto che la composizione del *target* non influenza di molto il meccanismo di accelerazione, mentre altre proprietà del bersaglio possiedono un ruolo fondamentale, come lo spessore e la rugosità della superficie opposta.

Infatti una modulazione della *rear surface* porta a variazioni nelle proprietà del fascio di protoni emesso [31]; modulando sinusoidalmente la *rear surface* del bersaglio sono stati accelerati protoni con delle variazioni spaziali, poichè il campo elettrico è generato perpendicolare alla superficie. I risultati ottenuti (mostrati in figura 1.15) hanno dimostrato la presenza di un effetto di *micro-focusing* dato dalla disuniformità spaziale della superficie. Diventa dunque un parametro fondamentale la rugosità della superficie opposta del bersaglio: sono stati studiati gli effetti di una diversa composizione e diversa rugosità utilizzando *target* micrometrici di Oro e di plastica [32] e i risultati ottenuti hanno mostrato

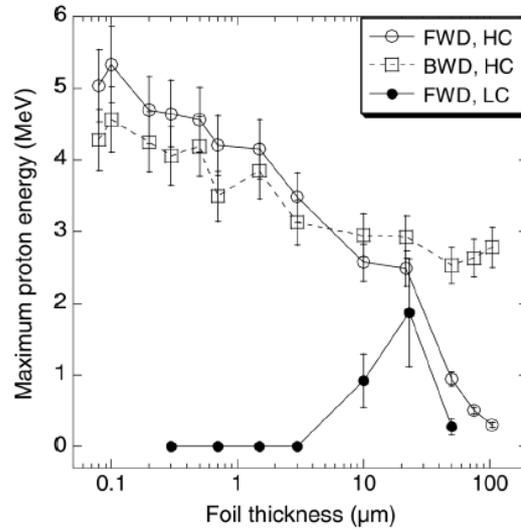


Figura 1.14: Energia massima di protoni accelerati in funzione dello spessore del *target* di alluminio. Sono distinti i casi di alto contrasto (HC) e basso contrasto (LC); sono anche mostrati i dati dei protoni emessi indietro (BWD). I parametri del laser sono: $65 fs$ di durata, $0.5 - 1 \cdot 10^{19} W/cm^2$ di intensità, 45° di incidenza e polarizzazione P. Da Ceccotti et al. [30].

che la composizione influisce poco sulle proprietà del fascio mentre la rugosità della superficie porta grandi effetti sugli ioni accelerati: nel caso di Oro, l'elevata rugosità diminuisce le qualità del fascio mentre, nel caso di plastica, inibisce completamente il meccanismo di accelerazione.

E' stato inoltre indagato l'effetto dello spessore del *target* sull'energia massima di protoni accelerati. Questa dipendenza è stata studiata con l'obiettivo di comprendere il ruolo giocato dalla dinamica degli elettroni caldi, nella formazione del campo elettrico accelerante [33]. I risultati sperimentali hanno mostrato un aumento dell'energia massima (da 6.5 a $24 MeV$) al diminuire dello spessore da $100 \mu m$ a $3 \mu m$; ciò ha dimostrato che un aumento della dimensione comporta una minore densità superficiale di elettroni caldi e una conseguente diminuzione del campo elettrico. La spiegazione è dovuta al fatto che gli elettroni generati dall'impulso vengono trasportati al lato opposto, in prima approssimazione con una divergenza costante (con un angolo che può variare dai 10° ai 45°) e per questo motivo a distanza maggiore la nuvola elettronica sarà meno densa, così come il rispettivo campo autoconsistente. Ciò spiega anche l'andamento di figura 1.14 [30], nella quale è osservabile un aumento dell'energia massima di protoni a spessori inferiori.

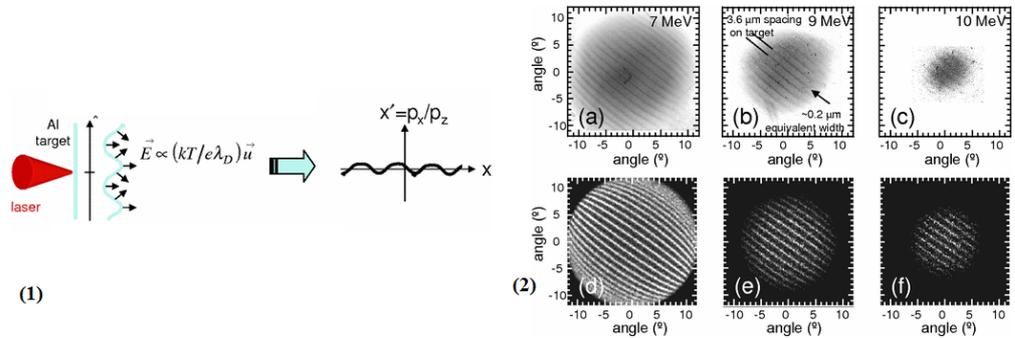


Figura 1.15: In (1) è mostrato il principio di funzionamento di un bersaglio con superficie modulata. In (2) sono mostrati i film radiocromici (RCF) di protoni accelerati da un bersaglio di $18 \mu\text{m}$ di Al a intensità di 10^{19} W/cm^2 (a-b-c), e i risultati di simulazioni con codici *Particle In Cell* (PIC) 3D con gli stessi parametri (d-e-f). Da Cowan et al. [31].

1.4.3 Bersagli non convenzionali

Nel tentativo di aumentare l'energia massima, o di ottenere spettri più utili per le applicazioni, sono stati creati bersagli avanzati; in questo paragrafo verranno illustrati i principali sviluppi degli ultimi anni, effettuati per ottimizzare il processo di accelerazione.

In primo luogo il *target* può essere modificato per ridurre l'emissione di protoni in favore di altri ioni o, al contrario, aumentarne il numero emesso. Ad esempio bersagli di Alluminio e Tungsteno sono stati riscaldati resistivamente per rimuovere i contaminanti idrogenoidi, ed è stato depositato su di essi un *coating* sulla *rear surface* di Carbonio, in un caso, e Fluoruro di Calcio, nell'altro [34]. Sono stati rispettivamente osservati ioni energetici di Carbonio, Calcio e Fluoro al posto di protoni; questa è stata un'ulteriore prova del fatto che il fenomeno di accelerazione avviene a causa dei campi elettrici generati all'interfaccia. Al contrario, sono stati microstrutturati bersagli alla *rear surface*, modulando un *coating* idrogenoide a "punti", come mostrato in figura 1.16, per ottenere un'emissione quasi-monoenergetica di protoni e un elevato numero di particelle [35].

Mentre, nell'ottica di ottimizzare il processo di accelerazione e incrementare l'energia massima degli ioni, è stata esplorata la possibilità di convogliare gli elettroni caldi in una regione confinata della superficie del *target*, in modo da aumentarne la densità e il campo elettrico risultante; in questa direzione sono stati fatti diversi esperimenti con bersagli di dimensione trasversale limitata (Reduced Mass Target, RMT). E' stato dimostrato sperimentalmente, per la prima volta con laser a impulsi lunghi, che bersagli di dimensione laterale di alcune decine di μm incrementavano le energie massime [36]; infatti gli elettroni che raggiungono l'interfaccia laterale hanno una probabilità di rimbalzare su di essa e ritornare verso il centro del bersaglio, aumentando la densità della nube elettronica. Gli

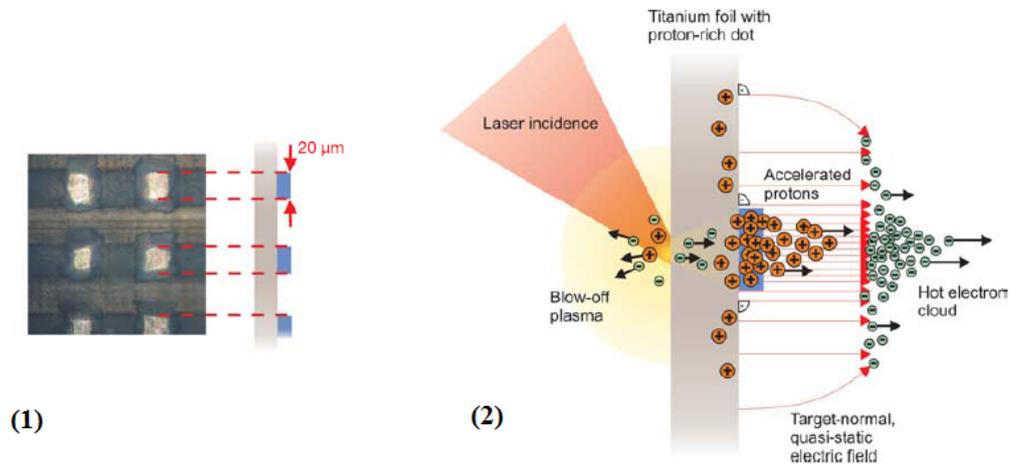


Figura 1.16: In (1) è mostrata l'immagine della *rear surface* microstrutturata; i punti di PMMA hanno spessore di $0.5 \mu m$ e dimensioni trasversali di $20 \times 20 \mu m$. In (2) è mostrato il meccanismo di TNSA per questo particolare bersaglio microstrutturato: la presenza di "punti" ricchi di idrogeno omogeneizza il campo accelerante dando luogo a protoni quasi-monoenergetici ad alta laminarità. Da Schwoerer et al. [35].

stessi risultati sono stati ottenuti anche con un laser a impulsi brevi (vedi figura 1.17) [37]. In entrambi i casi i *target* erano composti di una lamina di Oro con spessore micrometrico e diametro ottimo intorno ai $70 \mu m$, sostenuto da un sottile anello di vetro con un singolo "gambo"; in seguito all'irraggiamento gli shock indotti dal laser nel supporto portano alla rottura degli altri "gambi", i quali tengono gli altri RMT appartenenti allo stessa struttura. Ciò porta alla necessità di irraggiare un bersaglio alla volta cambiando di volta in volta il supporto. Nonostante l'evidente aumento di energia, questa tecnica ha il suo limite proprio nel sostegno, che non permette un alta frequenza di ripetizioni, necessaria per le applicazioni.

Nella categoria dei *Reduced Mass Target*, un esperimento di grande rilevanza, in quanto ha detenuto il record di energia massima dal 2011 per alcuni anni ($67.5 MeV$ di protoni), è quello di Gaillard et al. [38]. A un RMT è sovrapposto un cono di dimensioni micrometriche (mostrato in figura 1.18), il cui scopo era inizialmente quello di focalizzare l'impulso laser in un'area ristretta e aumentarne l'intensità; tuttavia l'aumento di energia ha origine da un effetto diverso, che avviene quando il laser incide sul bordo del cono (e non al centro come è intuitivo pensare): infatti gli elettroni dell'interfaccia del cono vengono estratti ed accelerati in fase con il laser, questo permette la creazione di una popolazione elettronica con temperatura maggiore e dunque a un campo elettrico più intenso. Nonostante l'au-

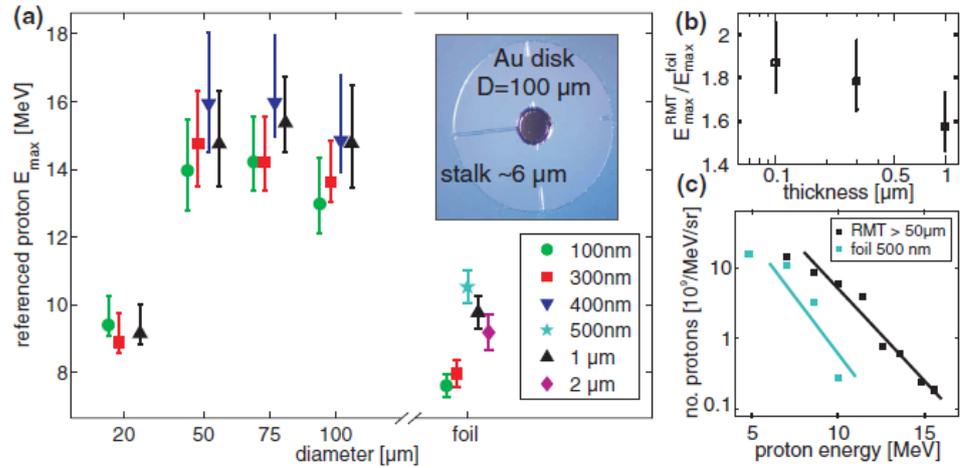


Figura 1.17: In (a) è mostrata l'energia massima dei protoni in funzione del diametro del target di oro. In (b), per il bersaglio migliore (75 μm), viene rappresentato il guadagno in energia massima. In (c) sono comparati spettri di protoni di RMT e di bersagli standard. Da Zeil et al. [37].

mento di energia, anche questa tecnica presenta le stesse problematiche proprie dei RMT (rottura supporto), con l'ulteriore difficoltà tecnologica di produrre in maniera industriale i microconi.

Un'altra possibilità per ottimizzare il processo è aumentare l'energia trasmessa dal laser alla popolazione elettronica; un importante risultato è stato raggiunto grazie a *target* con un sottile strato di microsferi del diametro di circa 500 nm (vedi figura 1.19) [39][29]. Queste sfere permettono di aumentare l'energia dei protoni emessi, per una serie di possibili motivi: l'area efficace è maggiore per cui il laser interagisce con un maggior numero di particelle e aumenta il numero della popolazione calda; il laser è bloccato dalle microsferi mentre gli elettroni no, per cui essi possono guadagnare più energia lungo la direzione longitudinale; la periodicità della superficie potrebbe entrare in risonanza con il plasmon superficiale generato dal laser. Per quanto riguarda la composizione, il target è formato da un substrato di 200 nm di Nitrato di Silicene sulla cui *rear surface* è depositato un film sottile di 50 nm di polietilene con la tecnica di *Physical Vapour Deposition*, mentre lo strato di microsferi è fabbricato attraverso l'autoassemblamento all'interfaccia aria-acqua.

Rimanendo nell'ottica di una maggiore conversione dell'energia del laser in energia di elettroni, si apre una grande categoria di esperimenti con bersagli detti *ultrathin*, in quanto le dimensioni spaziano nel *range* 1-100 nm; nei primi esperimenti sono stati irraggiati con impulsi lunghi *target* ultrasottili [40][41], rispettivamente di 5 e 30 nm, ottenendo un guadagno di energia di circa un fattore 2 rispetto a bersagli di dimensioni maggiori.

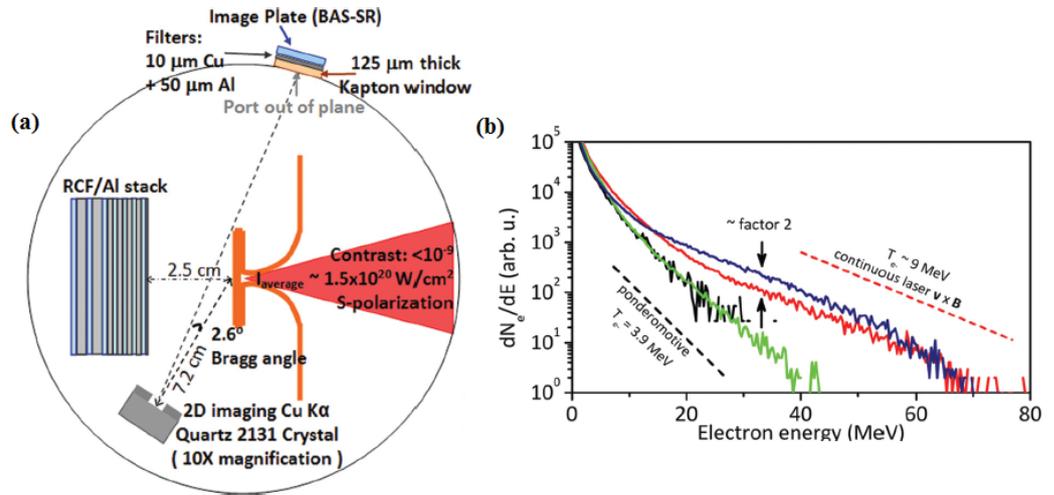


Figura 1.18: (a) Apparato sperimentale del Trident. (b) Spettro elettronico simulato per bersaglio RMT (in nero) e bersaglio con microcono di tipo 1 (più largo) a incidenza centrata (in verde) e incidenza con $15 \mu\text{m}$ di *offset* (in rosso) e di tipo 2 (più stretto) a incidenza centrata (in blu); sono anche mostrate i limiti dati dallo *scaling* ponderomotore e da quello di *direct laser-light-pressure*. Da Gaillard et al. [38].

L'aumento di energia è stato attribuito alla trasparenza relativistica auto-indotta (vedi paragrafo 1.2) che ha portato a un riscaldamento volumetrico della popolazione elettronica, classicamente sovradensa (la lunghezza di pelle in questi esperimenti è di circa 6 nm), e quindi a una maggiore conversione di energia del laser in energia di elettroni caldi. Negli anni seguenti si sono succeduti diversi altri esperimenti, nei quali è stato visto lo stesso effetto a intensità maggiori con impulsi lunghi, ottenendo energie massime elevate; il meccanismo di accelerazione, nominato *Break Out Afterburner* (BOA), ha permesso di ottenere, con un bersaglio di 745 nm , un'energia massima di protoni di 65 MeV [42]. Inoltre, in questo esperimento gli ioni sono stati rivelati lungo un angolo spostato di circa 10° rispetto alla normale al *target* (vedi figura 1.20); questo dato è stato interpretato come un'evidenza del fatto che gli elettroni caldi sono generati nel volume del *target* e quindi seguono la direzione di propagazione del laser (che in questo caso era esattamente a 10° dalla normale). Mentre l'attuale record di energia per protoni di 76 MeV è stato ottenuto con un bersaglio di 200 nm di spessore [43]. Un sostanziale aumento di energia (protoni di 45 MeV) è stato realizzato anche con sistemi laser a impulsi brevi [27], con un bersaglio di 10 nm ; in questo esperimento, che detiene l'attuale record di energia di protoni nel caso di sistemi laser a impulsi ultrabrevi, il fenomeno di accelerazione è stato interpretato come un meccanismo ibrido che include la TNSA, l'accelerazione da pressione di radiazione e l'esplosione Coulombiana.

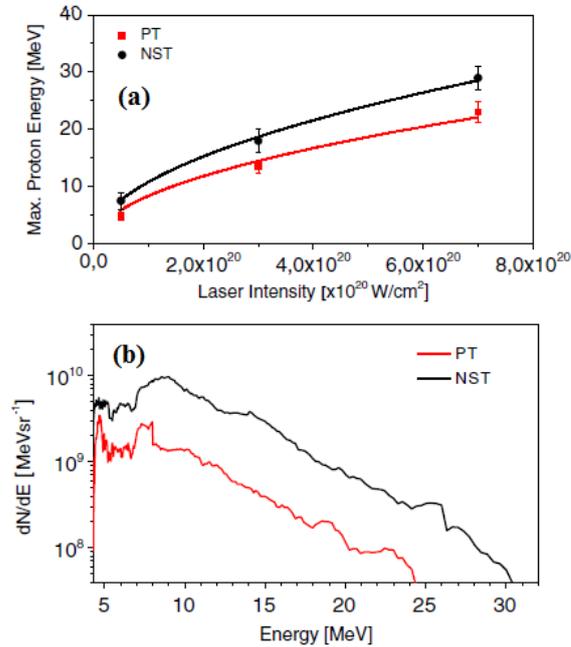


Figura 1.19: In (a) è rappresentata l'energia massima dei protoni in funzione dell'intensità per bersaglio standard (in nero) e bersaglio nanostrutturato (in rosso). In (b) lo spettro energetico dei protoni per bersaglio standard (in nero) e bersaglio nanostrutturato (in rosso). Da Margarone et al. [29].

I *target ultrathin* vengono fabbricati con *Diamond Like Carbon* (DLC) o con polimeri; nel primo caso si hanno densità vicine a quelle della grafite (2.7 g/cm^3) con un'elevata frazione di legami sp^3 (circa 75% di legami del tipo diamante) che permettono di avere proprietà meccaniche uniche, con un alto valore di sforzo di snervamento, di durezza e di resistenza termica, che permettono al film di essere ultra sottile e *free-standing*. Generalmente tali bersagli vengono fabbricati con la tecnica *DC Glow Discharge Sputter Deposition* e sono caratterizzati da microscopi a forza atomica (AFM), per ottenere lo spessore, e da *Elastic Recoil Detection Analysis* (ERDA) per la composizione. I bersagli polimerici presentano una densità di circa 1 g/cm^3 e una composizione variabile di Idrogeno e Carboni, che permette al film di essere *free-standing*; essi sono generalmente depositati mediante la tecnica di *Spin-Coating*, con un substrato che viene sciolto con apposito solvente. Entrambi i processi di produzione vengono illustrati in figura 1.21.

I risultati ottenuti con i bersagli avanzati appena descritti sono riassunti e rappresentati nelle figure 1.22, per impulsi lunghi, e 1.23, per impulsi brevi, in funzione della potenza dell'impulso.

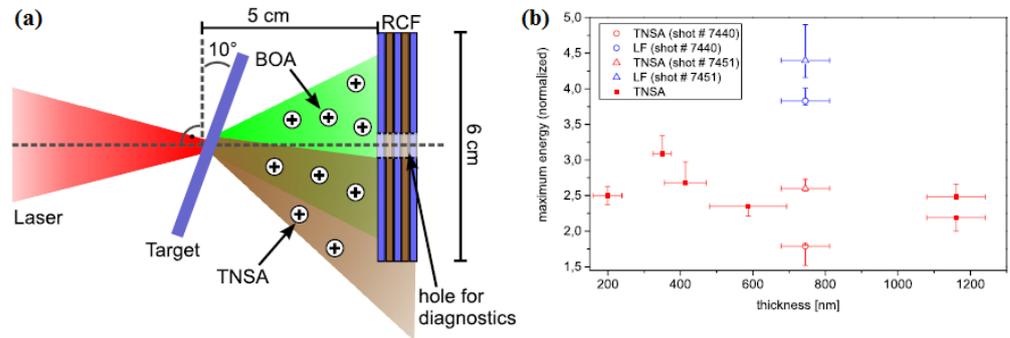


Figura 1.20: In (a) è rappresentato lo schema dell'apparato sperimentale di Wagner et al. [42]. In (b) l'energia massima di protoni normalizzata, in funzione dello spessore del *target*.

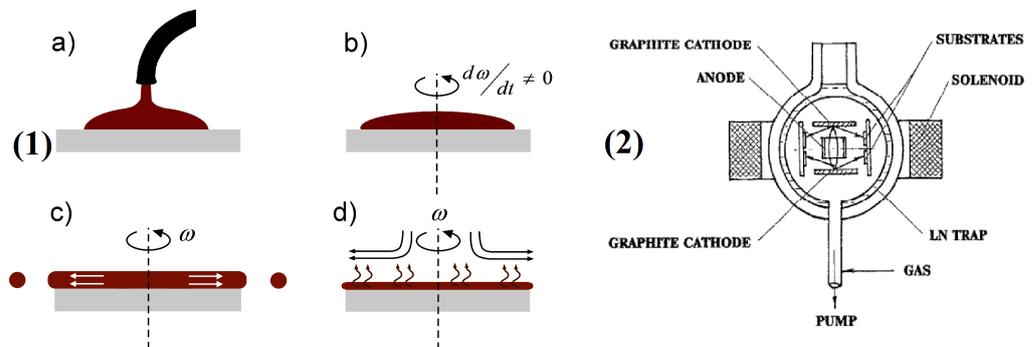


Figura 1.21: In (1) è rappresentato lo schema dell'apparato sperimentale dello *spin-coating*: (a) una soluzione contenente il soluto da depositare viene depositato su un disco che viene posto in rotazione (b) e (c), infine il solvente viene fatto evaporare (d). In (2) è rappresentato lo schema dell'apparato sperimentale della *DC glow discharge sputter deposition*; la scarica elettrica tra anodo e catodo forma un plasma della composizione di anodo e catodo che veicola la deposizione di particelle energetiche sul substrato.

1.4.4 Bersagli multistrato con schiume di Carbonio

Questo paragrafo presenta un'ultima strategia per ottimizzare il meccanismo di accelerazione, che consiste nell'utilizzare *target multilayer* composti da un substrato standard e un *coating* con densità vicino alla densità critica; in questo particolare ambito si colloca questo lavoro di tesi, per cui i risultati ottenuti sono descritti in dettaglio.

L'interazione tra impulsi laser e questi particolari bersagli comporta fenomeni complessi di dinamica relativistica (paragrafo 1.2) di difficile interpretazione, tuttavia si può descrivere qualitativamente il processo in questo modo: l'impulso laser propaga all'interno dello strato critico favorendo un maggiore accoppiamento tra radiazione ed elettroni

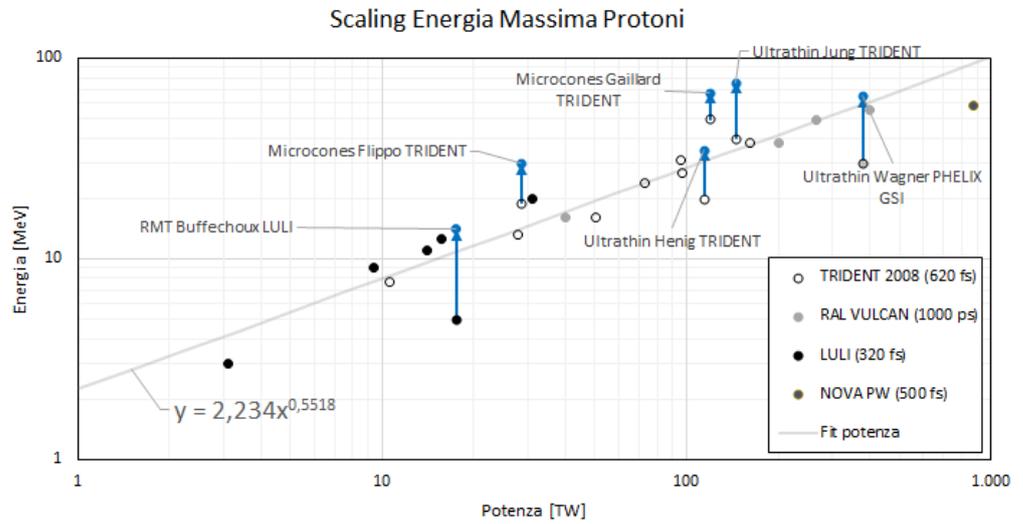


Figura 1.22: Energia massima di protoni in funzione della potenza di impulso, per impulsi lunghi (300-1000 fs); i valori ottenuti con bersagli avanzati sono rappresentati in blu con una freccia che indica l'aumento di energia rispetto al bersaglio convenzionale.

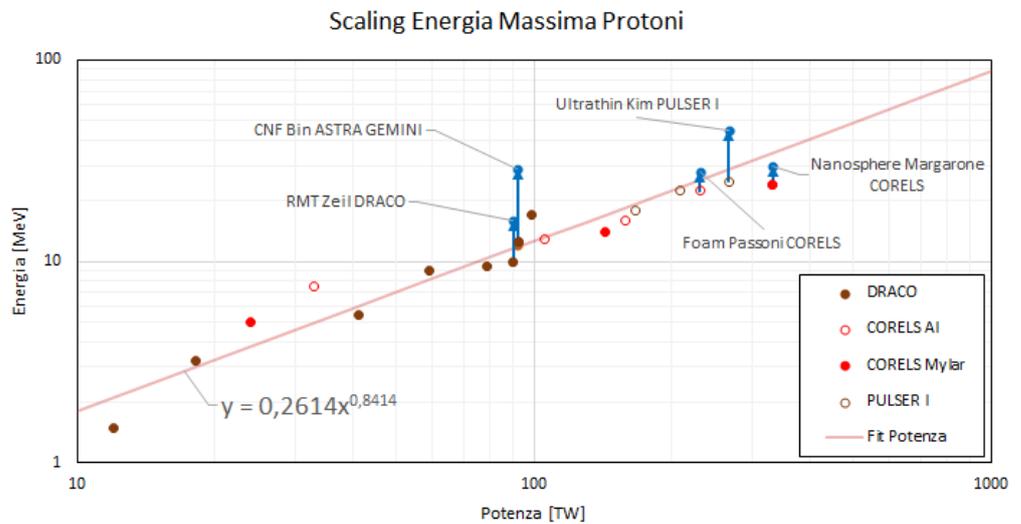


Figura 1.23: Energia massima di protoni in funzione della potenza di impulso, per impulsi brevi (30-50 fs); i valori ottenuti con bersagli avanzati sono rappresentati in blu con una freccia che indica l'aumento di energia rispetto al bersaglio convenzionale.

(di volume, al posto che di superficie), ciò porta a una generazione di elettroni energetici maggiore in numero e con energie elevate. Per la prima volta nel 2014, esperimenti con

questi bersagli hanno evidenziato un aumento sistematico dell'energia di *cut-off* [44]: a Saclay sono stati irraggiati bersagli di alluminio di $1.5 \mu\text{m}$ ricoperti da una schiuma di Carbonio della densità di circa 7 mg/cm^3 (1.2 volte la densità critica), generando protoni energetici con un guadagno massimo per spessori di film di $8 \mu\text{m}$. Successivamente anche altri esperimenti hanno confermato questi risultati, con guadagni di energia superiori a 2 (vedi figura 1.24) [24], imputando l'incremento all'effetto di *self-focusing* relativistico. I *target* di quest'ultimo esperimento possedevano una differente, seppur simile, composizione: un substrato nanometrico di DLC e un *coating* di nanotubi di Carbonio della densità di circa 2 volte la densità critica, i quali hanno generato un massimo guadagno di energia in corrispondenza di un film di $9 \mu\text{m}$.

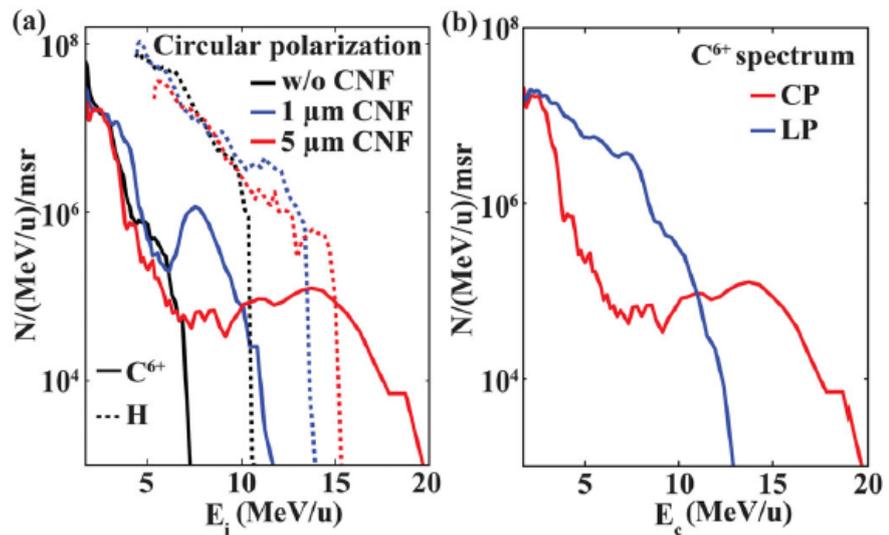


Figura 1.24: In (a) è mostrato lo spettro energetico degli ioni C^{6+} (linee continue) e di protoni (linee tratteggiate) ottenuti con fogli DLC combinati con *Carbon Nanotube Foam* (CNF) di diversi spessori, irradiati da impulsi con polarizzazione circolare. In (b) è mostrato lo spettro energetico degli ioni C^{6+} sotto le condizioni migliori, per polarizzazione circolare (in rosso) e lineare (in blu). Da Bin et al. [24].

Altri esperimenti si sono succeduti, indagando l'effetto delle schiume a densità critica a intensità più elevate [45], al CoReLS. Anche in questo caso nei dati ottenuti, mostrati in figura 1.25, si osserva un aumento sistematico dell'energia; è molto interessante notare che l'energia massima, nel caso di bersaglio multistrato, non varia con la polarizzazione. Poiché i meccanismi di generazione di elettroni caldi, di tipo superficiale (ad esempio l'effetto Brunel) dipendono fortemente dalla polarizzazione, questa evidenza è un'ulteriore prova che il meccanismo di generazione di elettroni sia di tipo volumetrico.

I dati ottenuti al CoReLS e quelli ottenuti a Saclay sono stati riportati nello stesso

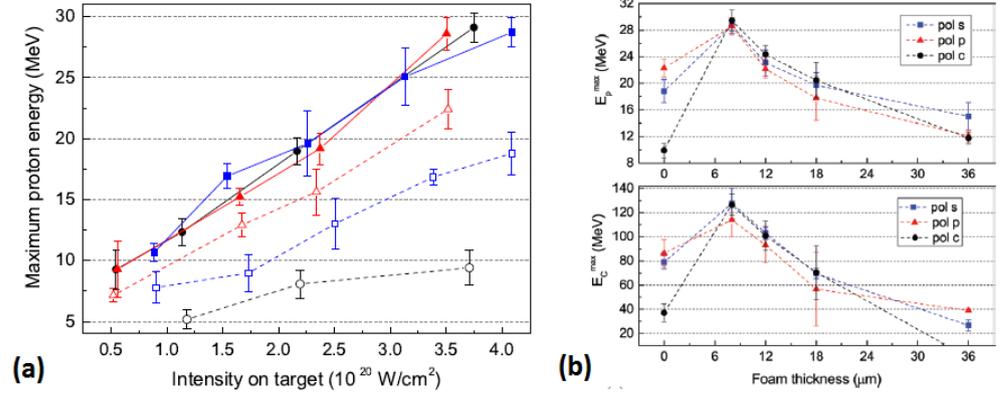


Figura 1.25: In (a) è mostrata l'energia massima di protoni in funzione dell'intensità del laser per *target* convenzionali di $0.75 \mu\text{m}$ di Alluminio (simboli vuoti) e *target multistrato* (simboli pieni), per diverse polarizzazioni: S (in blu), P (in rosso), C (in nero). Da Passoni et al. [28]. In (b) è mostrata l'energia massima di protoni (sopra) e ioni Carbonio (sotto) in funzione dello spessore del film di schiuma di Carbonio, con intensità pari a $4 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$ e diversa polarizzazione: S in blu, P in rosso, C in nero. Da Prencipe et al. [45].

grafico (vedi figura 1.26). In essi si osservano due diversi andamenti di crescita in funzione della intensità, a causa delle diverse condizioni degli esperimenti (diverso angolo di incidenza, diverso spessore del substrato, diversa energia di impulso), tuttavia si possono trarre informazioni utili: l'aumento di energia è sistematico sia a moderata intensità ($10^{16} - 10^{18} \text{ W/cm}^2$) che ad alta intensità ($10^{19} - 10^{21} \text{ W/cm}^2$), ma non nel regime intermedio, in cui le energie risultanti dai bersagli multistrato non si discostano dal bersaglio convenzionale. Ciò è attribuito al fatto che a intensità moderata la schiuma viene parzialmente ionizzata, dando luogo alla propagazione del laser in un plasma sottodensso e alla generazione efficace di elettroni; mentre a intensità intorno a 10^{19} W/cm^2 la schiuma viene ionizzata completamente dando luogo a un plasma sovradensso (la densità della schiuma è circa 1.2 volte la densità critica) che non permette all'impulso di propagare; invece ad alta intensità l'impulso laser è in grado di innescare fenomeni di trasparenza relativistica e di forza ponderomotiva, tali da rendere il plasma trasparente alla radiazione laser, permettendo la generazione di elettroni caldi volumetrici.

In questa categoria di bersagli avanzati ricade il lavoro di questa tesi, in quanto sono state fabbricate schiume di Carbonio di diverso spessore e diversa densità, confrontabile a quella critica, in modo da ottimizzare il processo di accelerazione; questo lavoro sarà descritto in dettaglio nei seguenti capitoli.

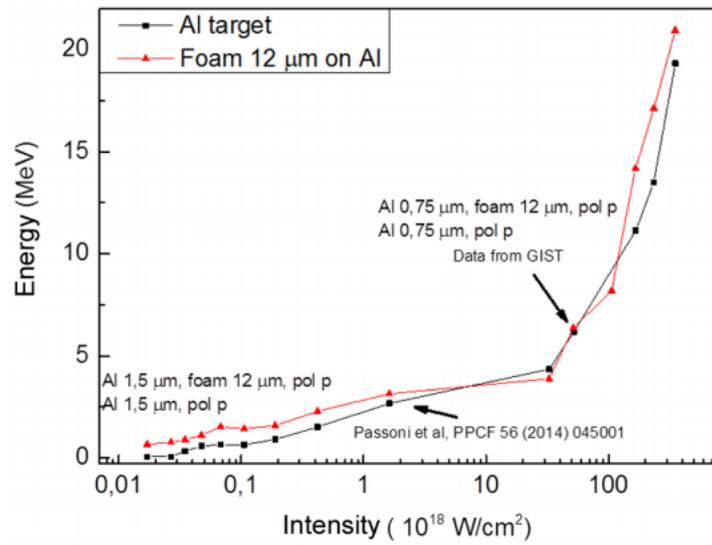


Figura 1.26: Energia massima di protoni in funzione dell'intensità del laser per *target* convenzionali di Alluminio (in nero) e *target multistrato* con 12 μm di schiuma (in rosso), per polarizzazione P. I dati a intensità moderata sono stati raccolti a Saclay, con substrato spesso 1.5 μm e incidenza a 10° , lo *scan* di intensità è stato effettuato variando il *focal spot*; i dati a intensità elevata sono stati ottenuti al CoReLS, con substrato di 0.75 μm e incidenza a 30° , lo *scan* di intensità è stato effettuato variando l'energia dell'impulso. Le diverse condizioni di esperimento spiegano la diversa pendenza delle rette interpolanti. Da Prencipe [46].

Capitolo 2

Tecniche di fabbricazione di schiume di Carbonio e di diagnostica di ioni accelerati

2.1 Introduzione

In questo capitolo verranno descritte tecniche sperimentali necessarie per la realizzazione di esperimenti di accelerazione di ioni da laser, con i bersagli descritti nel paragrafo 1.4.4. In particolare si presentano le tecniche, recentemente sviluppate, per produrre e caratterizzare film di Carbonio nanostrutturato a bassissima densità (le cosiddette schiume di Carbonio). Inoltre si descrivono gli strumenti di diagnostica di ioni comunemente utilizzati, facendo riferimento nello specifico a quelli usati negli esperimenti realizzati con bersagli multistrato, avvenuti nel 2015 in Corea del Sud e descritti nel capitolo 4.

La fabbricazione delle schiume, descritta nella sezione 2.2, è ottenuta mediante la *Pulsed Laser Deposition* (PLD), una particolare tecnica di *Physical Vapour Deposition* (PVD) che sfrutta impulsi laser. I film, così prodotti, sono caratterizzati in termini di morfologia, spessore e densità (che deve essere vicina alla densità critica, paragrafo 1.4.4), mediante le tecniche illustrate nella sezione 2.3; in particolare lo spessore viene misurato attraverso un microscopio elettronico a scansione (SEM), mentre la fase di valutazione della densità, che assume una grande importanza, è basata su dati acquisiti mediante la tecnica *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (EDXS).

La diagnostica di ioni accelerati consiste nel misurare diversi dati delle particelle, come l'energia massima, lo spettro energetico, la distribuzione spaziale; diversi strumenti permettono di ricavare queste informazioni, come ad esempio gli *stack* di film radiocromici

(RCF) e gli spettrometri di massa a Parabola Thomson. Questi ed altri strumenti sono descritti nella sezione 2.3.

2.2 Tecniche di produzione di schiume di Carbonio

2.2.1 *Pulsed Laser Deposition* (PLD)

La *Pulsed Laser Deposition* (PLD) appartiene alla famiglia di metodi basati sulla *Physical Vapour Deposition* (PVD), dove la fase evaporata è prodotta dall'ablazione di un bersaglio solido mediante irraggiamento di impulsi laser. Il processo avviene in una camera a vuoto con atmosfera controllata e può essere suddivisa in tre fasi (vedi figura 2.1):

1. La superficie del bersaglio, irraggiata con impulsi laser di intensità e durata variabile ($10^9 - 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $ms - fs$), raggiunge temperature tali da produrre una nuvola di specie vaporizzate (atomi, molecole, ioni, elettroni e *cluster*), che vengono dunque ablate dal materiale.
2. Le specie ablate si espandono nella camera di deposizione, che può essere riempita di un gas di *background*, con una caratteristica forma a "piuma".
3. le specie ablate raggiungono il substrato solido posto di fronte al bersaglio irraggiato dal laser, sul quale vengono depositate producendo un film sottile.

Le proprietà del film depositato sono fortemente dipendenti dalle condizioni di deposizione, che influenzano la formazione della piuma di plasma e la propagazione e produzione degli aggregati in essa (molecole, nanoparticelle e *cluster*). Il processo è caratterizzato da una serie di parametri di processo, come la geometria (la posizione e il movimento del substrato rispetto al bersaglio), la temperatura del substrato, il materiale del bersaglio e la presenza di un gas di *background*. Anche le proprietà del laser influenzano la deposizione: ad esempio la lunghezza d'onda e la fluensa sono responsabili dell'energia depositata nell'unità di volume, del grado di ionizzazione delle specie ablate e la rispettiva energia.

Il processo di crescita è dunque molto flessibile e può essere regolato scegliendo appropriate condizioni di deposizione, in modo da produrre film con una grande varietà di morfologie, in un ampio *range* di spessori e densità, in regime di deposizione controllata. Inoltre si può utilizzare qualsiasi materiale come bersaglio e come substrato e il meccanismo di ablazione permette la conservazione della stechiometria del bersaglio nella piuma di plasma e, in assenza di reazione con il gas di *background*, nel film depositato.

Tuttavia il grande numero di parametri influenza la riproducibilità del processo, la quale, in alcune situazioni, risulta essere bassa. Oltre a questo fattore, un altro principale limite della PLD è la difficoltà di ottenere una copertura uniforme del substrato, per

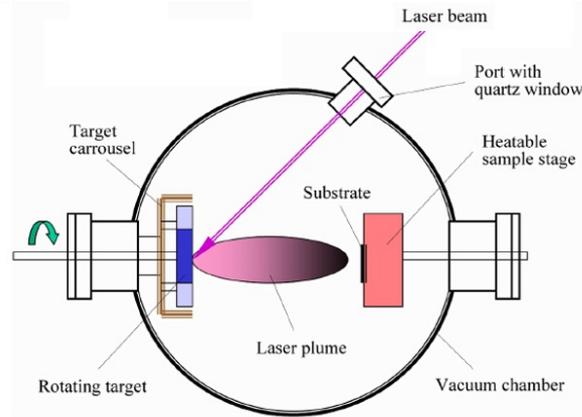


Figura 2.1: Schema dell'apparato sperimentale della tecnica *Pulsed Laser Deposition*.

superfici maggiori di qualche cm^2 , a causa della forma del film depositato che è approssimativamente Gaussiana, e a causa di effetti di "ombra" che permettono la deposizione di film solo su substrati planari. Inoltre la rideposizione di gocce di materiale fuso sul bersaglio può ridurre la qualità del film depositato, specialmente per bersagli con bassa temperatura di fusione.

Per descrivere più in dettaglio il processo di ablazione, bisogna considerare che il laser può depositare energia all'interno del target solo alla popolazione elettronica, inoltre la radiazione presenta una tipica attenuazione esponenziale alla Lambert-Beer, lungo la profondità del bersaglio, con lunghezza caratteristica $l_a = 1/\mu$, dove μ è il coefficiente di assorbimento (per i metalli la lunghezza di estinzione è circa pari alla lunghezza di pelle, vedi paragrafo 1.2, in quanto in prima approssimazione il metallo si può considerare come un gas di elettroni liberi). Poiché i processi di assorbimento elettronici avvengono sulla scala temporale dei fs , mentre i processi elettrone-fonone avvengono su una scala più lunga (sopra i ps), si distinguono diversi processi proprio in base alla durata di impulso laser: ad esempio nel caso di PLD con impulsi al ms o ns , il bersaglio può essere modellizzato con una sola temperatura (gli elettroni hanno la stessa temperatura degli ioni), in quanto su questa scala temporale la popolazione elettronica è in equilibrio termico con il reticolo cristallino. Inoltre poiché la formazione del plasma segue la dinamica ionica, con tempi caratteristici di ω_{pi}^{-1} (che assume valori tipici di 100-1000 fs), la piuma in espansione può interagire con l'impulso stesso e assorbirne energia, attraverso fenomeni di assorbimento accennati nel paragrafo 1.2, quale il *Bremmstrahlung* inverso.

Confrontando la lunghezza di assorbimento del laser l_a con la lunghezza di diffusione del calore per materiali omogenei e isotropi $l_\tau = 2\sqrt{D\tau_l}$, dove D è la diffusività del materiale e τ_l la durata di impulso, si distinguono due regimi differenti: se $l_a > l_\tau$ si parla di ablazione congruente, dove il calore ceduto dal laser al bersaglio è confinato ed esso esplode e forma

una piuma in espansione fortemente direzionale. Mentre se $l_a < l_r$ si parla di ablazione non-congruente (che avviene principalmente per metalli, dove la diffusività è elevata), dove il materiale si scalda anche al di fuori del *focal spot* e dà origine a evaporazione termica, e quindi a un'espansione isotropa.

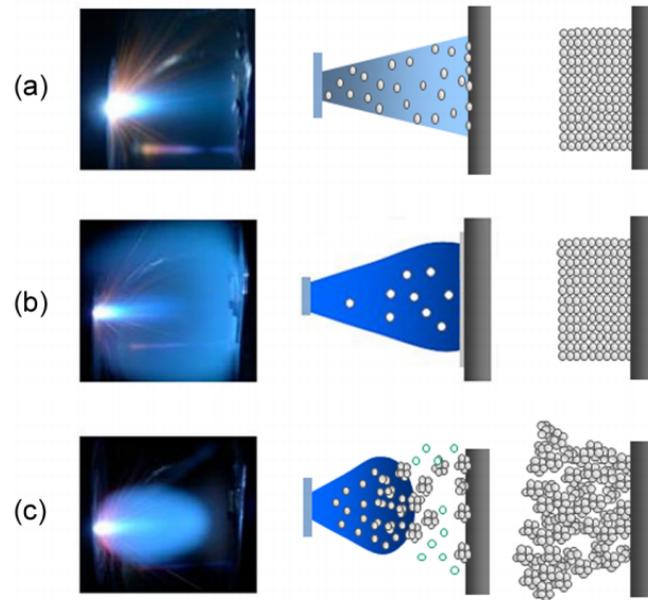


Figura 2.2: Viene mostrata la piuma di ablazione di Tungsteno in diverse condizioni di pressione di gas ambientale: in vuoto (a) e in Elio a bassa pressione (b) il film depositato è compatto, mentre in Elio ad alta pressione (c) il film è poroso.

In assenza di gas di *background* il plasma si espande liberamente e le specie ablate conservano la loro velocità iniziale; il processo può essere descritto come l'espansione adiabatica di un gas. La presenza di un gas influisce fortemente sulla propagazione e sull'energia cinetica delle specie ablate; in questo caso esistono due regimi differenti di deposizione (vedi figura 2.2):

1. Regime a bassa pressione, alta energia delle specie e bassa distanza *target*-substrato: l'espansione è fortemente direzionale, in quanto il plasma non è molto influenzato dalle collisioni con il gas di ambiente. In questo caso la bassa luminosità della piuma è data dalla diseccitazione delle specie più interne al plasma.
2. Regime ad alta pressione, bassa energia delle specie e alta distanza *target*-substrato: l'alta velocità di espansione delle specie (supersonica) forma una regione di alta compressione all'interfaccia tra gas e plasma e può portare alla creazione di un'onda di *shock*. Quando la pressione diminuisce a causa dell'espansione, il materiale ablato

si diffonde nella camera e la deposizione diventa meno direzionale e la fluorescenza aumenta. La piuma di plasma viene dunque confinata dal gas di *background*, con un'estensione longitudinale inferiore al primo caso e un'estensione trasversale maggiore, mostrando una forma emisferica.

In base a questi diversi processi di espansione si distinguono due processi di crescita del film. Nel caso di bassa pressione o vuoto, le specie raggiungono il substrato con alta energia cinetica e il film depositato è di conseguenza compatto. Mentre nel regime di alta pressione, il substrato è raggiunto da *cluster* poco energetici di particelle che si formano durante l'espansione e che si aggregano su di esso formando strutture maggiormente porose, disordinate, caratterizzate in generale da una complessa nanostruttura.

La morfologia del film è anche influenzata dalla temperatura del substrato che, se sufficientemente alta, favorisce la diffusione atomica e la riorganizzazione del film in strutture più stabili (cristalli). Un altro parametro di processo che permette di controllare la morfologia del film, è la distanza tra bersaglio e substrato: se questa distanza è inferiore alle dimensioni della piuma, le specie sono energetiche e il film compatto, mentre se la distanza è superiore l'energia cinetica è bassa e la crescita è caratterizzata da assemblamento di *cluster*.

Le tipologie di film che si possono ottenere tramite PLD sono molto numerose, ad esempio è possibile creare film cristallini, microcristallini, amorfi, nanostrutturati. A causa dell'alto numero di parametri di processo, non è possibile determinare a priori, dato un obiettivo, quale *range* di parametri è necessario utilizzare; tuttavia è possibile dare una distinzione grossolana in termini di film poroso o compatto (vedi tabella 2.2.1).

Parametri di processo	Film	
	Compatto	Poroso
Fluenza laser	Alta	Bassa
Pressione di gas in camera	Bassa	Alta
Distanza <i>target</i> -substrato	Bassa	Alta
Substrato riscaldato	Si	No

Tabella 2.1: Sono riassunti i principali parametri di processo e i relativi effetti (qualitativi) sulla morfologia del film depositato.

2.2.2 Deposizione di schiume di Carbonio con PLD

Film nanostrutturati e altamente porosi di Carbonio (schiume) sono stati ottenuti la prima volta negli anni 2000 tramite PLD con impulsi di *ps* e frequenza di *KHz*, in presenza di Argon [47] (vedi figura 2.3). La formazione di questi campioni è resa possibile dall'alta

frequenza di urti tra gli atomi di Carbonio nella piuma e gli atomi di Argon, per generare, con un processo *diffusion-limited, cluster* di particelle di Carbonio. Una volta formati, gli aggregati raggiungono il substrato, posto a grande distanza, con bassa energia cinetica dando luogo alla formazione di strutture frattali con un'elevata frazione di legami sp^3 (del tipo diamante); il materiale risultante possiede un'elevata porosità e di conseguenza densità molto bassa, $2-10 \text{ mg/cm}^3$. Questa caratteristica rende dunque le schiume di Carbonio un materiale di possibile utilizzo in campo di accelerazione laser-plasma, infatti è stato osservato che film di densità critica (pari a 5.7 mg/cm^3) possono aumentare l'accoppiamento con l'impulso e dare luogo a ioni più energetici.

Questo paragrafo descrive quindi la realizzazione di bersagli multistrato con *coating* di schiume di Carbonio, tramite l'utilizzo di PLS con impulsi al ns [48], che sono stati utilizzati nel 2014 con lo scopo di aumentare l'energia degli ioni accelerati da impulsi laser superintensi [44] (vedi paragrafo 1.4.4). In particolare il film sono stati prodotti con le seguenti proprietà: densità vicina alla densità critica (pari a 5.7 mg/cm^3), spessore nell'ordine delle decine di μm e omogeneità nella scala spaziale dei μm , cioè sulla scala di interazione con il laser.

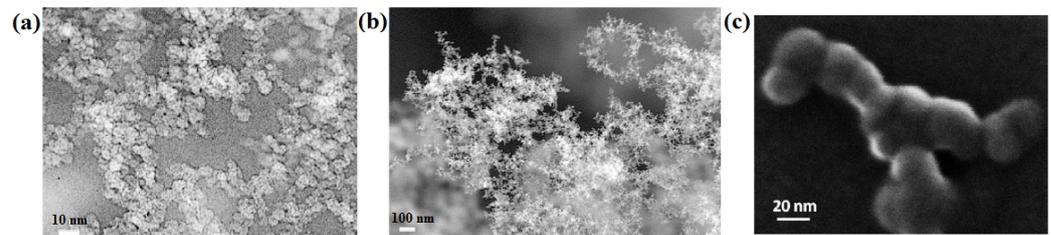


Figura 2.3: Schiume di Carbonio prodotte da PLD nel regime dei ps: (a) immagine ottenuta con STEM che mostra la tipica formazione di *cluster*; (b) immagine ottenuta con SEM che mostra la struttura a rete, con magnificazione inferiore. Da Rode et al. [47]. (c) Immagine ottenuta con HR-STEM illustrativa di una nanoparticella di Carbonio, depositata in atmosfera di Elio a 200 Pa . Le dimensioni caratteristiche sono di 20 nm . Da Zani et al. [48].

La tecnica prevede l'utilizzo di un laser con i seguenti parametri: lunghezza d'onda $\lambda = 532 \text{ nm}$ ottenuto dalla seconda armonica un laser pulsato Nd:YAG con durata d'impulso di $5-7 \text{ ns}$ (funzionante a *Q-switching*) e una frequenza di ripetizione di 10 Hz . Il laser incide a 45° su un bersaglio di grafite pirolitica e le specie ablate incidono su un substrato di Silicio (100) mantenuto a temperatura ambiente. Per ottenere un materiale altamente poroso è necessario aumentare la distanza bersaglio-substrato che è pari a 8.5 cm , inoltre viene abbassata la fluensa del laser, pari a 0.8 J/cm^2 , usando impulsi poco energetici, intorno ai 100 mJ , e una bassa focalizzazione con un *focal spot* di 12.5 mm^2 . Come gas

di *background* si è usato Argon o Elio, rispettivamente con massa atomica maggiore e inferiore del Carbonio, che hanno dato morfologie differenti in funzione della pressione in camera. Inoltre è stato sfruttato il flusso longitudinale di gas in camera ($0.03\text{-}3\text{ mg/s}$) per ridurre le disomogeneità superficiali delle schiume.

A prescindere dal gas di *background* e del valore di pressione in camera, è stato dimostrato che nella piuma si aggregano nanoparticelle di Carbonio; si osserva in figura 2.3 l'immagine ottenuta tramite *High Resolution Scanning Transmission Electron Microscopy* (HR-STEM) di una nanoparticella che costituisce l'elemento fondamentale della struttura della schiuma (con dimensione caratteristica di 20 nm), caratterizzate da legami prevalentemente sp^2 e una rete di domini disordinati, contenenti prevalentemente strutture ad anello con membri dispari e poche strutture a catena. Le variazioni alla mesoscala sono ottenute variando la pressione del gas in camera; aumentando questo parametro si possono generare schiume con strutture più porose in un ampio *range* di densità, $1\text{-}1000\text{ mg/cm}^3$, con evidenti variazioni di morfologia, che saranno descritte più in dettaglio nel paragrafo 2.3.2.

2.3 Tecniche di caratterizzazione di schiume di Carbonio

2.3.1 *Scanning Electron Microscope* (SEM) e *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (EDXS)

Come descritto in dettaglio nei paragrafi 2.3.2 e 2.3.3, la caratterizzazione di morfologia e densità di film sottili nanostrutturati, può essere effettuata attraverso tecniche di microscopia a scansione elettronica e spettroscopia. Queste tecniche verranno sinteticamente introdotte in questo paragrafo.

Il microscopio elettronico a scansione (SEM) [49] è uno strumento che sfrutta un fascio di elettroni primari focalizzati (con energia di $1\text{-}30\text{ keV}$), al posto della radiazione luminosa, per visualizzare campioni submicrometrici. Il fascio primario non è fisso, ma viene fatto scandire: viene cioè pilotato in sequenza, punto dopo punto, riga dopo riga, su una piccola zona rettangolare del campione. Nell'interazione tra il fascio primario e gli atomi costituenti il campione, vengono emesse numerose particelle, fra le quali gli elettroni secondari. Questi elettroni sono catturati da uno speciale rivelatore e convertiti in impulsi elettrici che vengono inviati in tempo reale ad uno schermo. Il risultato è un'immagine in bianco e nero ad elevata risoluzione e grande profondità di campo, che ha caratteristiche simili a quelle di una normale immagine fotografica. Per questa ragione le immagini SEM sono immediatamente intelligibili ed intuitive da comprendere. Il microscopio elettronico a scansione può ottenere immagini che appaiono quasi tridimensionali anche di oggetti

relativamente grandi (come un insetto), con un potere risolutivo che si aggira intorno a 5 *nm*.

Il principio di funzionamento si può descrivere nel seguente modo: un emettitore costituito tipicamente da un filamento di Tungsteno, che viene portato oltre i 1000°C per riscaldamento elettrico, funge da sorgente di elettroni per effetto termoelettronico. Il fascio elettronico così generato viene dapprima accelerato da una differenza di potenziale di 0,3-30 *kV* e quindi passa attraverso un collimatore elettromagnetico per essere deflesso, in modo da generare la scansione, e successivamente viene focalizzato sul piatto contenente il campione da analizzare. Tutto ciò è svolto sotto vuoto, a circa 5-10 *mbar*, per aumentare il libero cammino medio degli elettroni ed evitare fenomeni di diffusione dovuti a interazioni di elettroni con molecole di aria.

Gli altri segnali emessi dal campione in seguito all'eccitazione del fascio sono: elettroni retrodiffusi, raggi X, catodoluminescenza, correnti indotte dal fascio e per alcuni tipi di campioni, anche elettroni trasmessi. Questi segnali possono essere rivelati da specifici rivelatori e sono usati in numerose tecniche di misura: *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (EDXS), catodoluminescenza, etc.

Con il termine EDXS si indica una tecnica che sfrutta l'emissione di raggi X generati dal fascio elettronico incidente sul campione, per ottenere informazioni sulla composizione elementare. La radiazione viene raccolta da un rivelatore che può essere costituito da un cristallo ricurvo che sfrutta la legge di Bragg, oppure da un rivelatore a semiconduttore, ad esempio al Germanio.

I dati del rivelatore vengono raccolti in uno spettro energetico della radiazione X emessa dal campione, di cui è mostrato un esempio in figura 2.4. Si può osservare la presenza di un *background* di radiazione di frenamento (*Bremsstrahlung*), dovuta alle collisioni Coulombiane tra elettroni primari e nuclei, a cui è sovrapposta la presenza di picchi caratteristici; questi sono dovuti all'emissione di diseccitazione di elettroni appartenenti a *shell* esterne che transiscono a *shell* più interne, ionizzate dal fascio di elettroni primari. L'energia del picco è dunque data dalla relazione $E_X = E_f - E_i$ ed è propria di ogni singolo elemento; per questo motivo vengono detti raggi X caratteristici. Questa tecnica permette non solo di indagare la presenza di elementi in un campione, ma anche di ottenere delle informazioni riguardo lo spessore massico del campione, come verrà illustrato in dettaglio nel paragrafo 2.3.3.

2.3.2 Caratterizzazione della morfologia e misura dello spessore con SEM

Con l'utilizzo del SEM è possibile studiare la morfologia e lo spessore delle schiume di Carbonio depositate tramite la PLD. A titolo d'esempio, nella figura 2.5 sono rappresentate immagini SEM, viste dall'alto, di schiume depositate in presenza di Elio e Argon; si

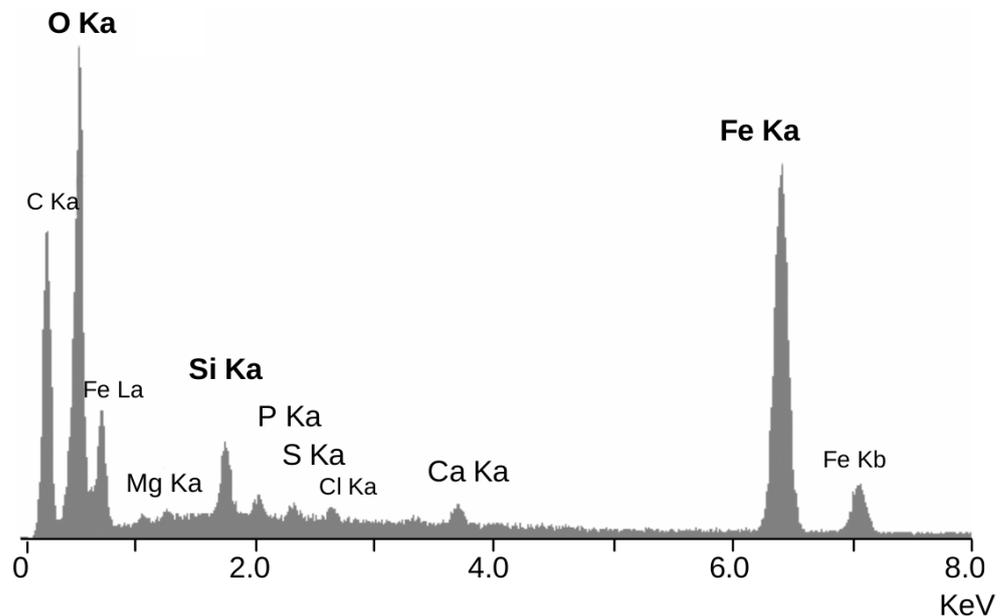


Figura 2.4: Spettro ottenuto tramite EDXS di un campione contenente diversi elementi. E' visibile la radiazione di *Bremmstrahlung* a cui sono sovrapposti i picchi X caratteristici. Il software riconosce automaticamente, in base all'energia del picco, l'elemento corrispondente.

osserva una completa copertura della superficie, che alla mesoscala si apre a pressione di gas in camera crescente (rispettivamente 30, 100, 500 Pa). In particolare, sotto 100 Pa , si sviluppa una struttura a "cavolfiore", mentre sopra 100 Pa appare una morfologia disordinata più porosa che rimane simile fino a 1000 Pa , dove si osserva allo stesso modo una copertura completa del substrato.

In figura 2.6 si possono vedere le immagini SEM degli stessi campioni di figura 2.5, da una sezione trasversale. Si osserva, allo stesso modo, che a bassa pressione il film assume una crescita di tipo "cavolfiore", mentre a pressione più alta la morfologia evolve in una configurazione più disordinata. Queste immagini, acquisite a sezione trasversale, permettono la misura dello spessore delle schiume, anche se esso è di difficile definizione a causa della struttura porosa; esso viene infatti mediato sulla dimensione delle centinaia di μm .

Si nota che la struttura è formata da nanoparticelle, mostrate in un'immagine HR-STEM in figura 2.3, di dimensione caratteristica di circa 20 nm . Le nanoparticelle, costituenti le schiume, si aggregano a formare particelle di dimensione maggiore che caratterizzano la morfologia alla mesoscala: sotto 100 Pa queste macroparticelle sono compatte, mentre a pressione in camera maggiore, esse sembrano più porose e ricche di vuoti, di

dimensione di decine di nm . Queste osservazioni sono confermate dalla misurazione della densità, ottenuta con una microbilancia a cristallo di quarzo (QCM): in figura 2.7 sono mostrati i valori di densità di schiume di Carbonio, ottenuti a diverse pressioni di gas in camera. Si distinguono due curve in funzione del gas usato: a parità di pressione vengono prodotti film con densità maggiori nel caso di Elio. Questo effetto è probabilmente causato dal fatto che la massa atomica dell'Elio è minore di quella del Carbonio, il che porta a un minore confinamento della "piuma" di plasma e a specie più energetiche; ci si aspetta infatti che specie maggiormente energetiche possano aggregarsi meno facilmente in strutture fortemente porose e poco dense.

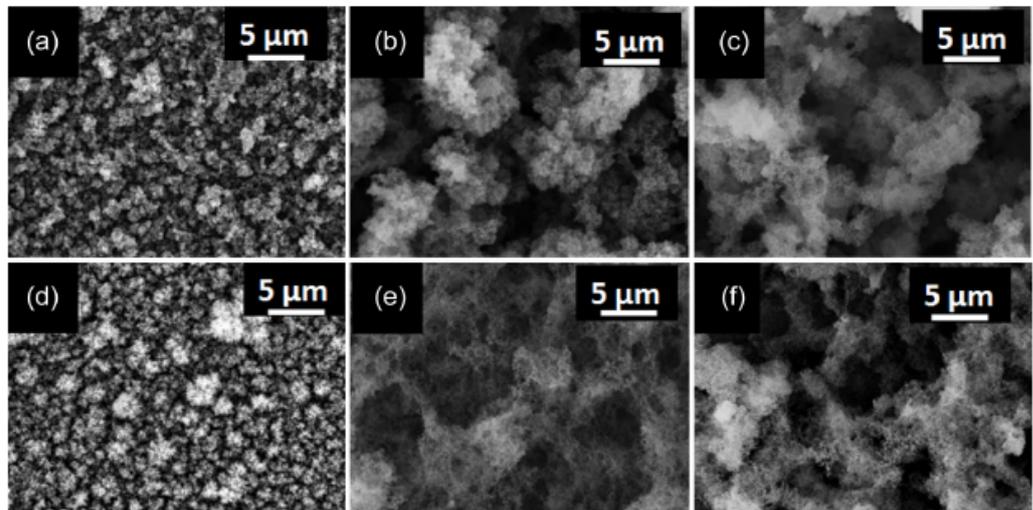


Figura 2.5: Immagini SEM, viste dall'alto, di campioni depositati in Elio (riga superiore) e in Argon (riga inferiore) a diverse pressioni: (a,d) 30 Pa, (b,e) 100 Pa, (c,f) 500 Pa.

2.3.3 Misurazione di densità di film sottili mediante EDXS

La misurazione di densità di film sottili può essere effettuata attraverso diverse tecniche; quelle di tipo nucleare, quali la spettroscopia a *backscattering* Rutherford (RBS) e l'*elastic recoil detection analysis* (ERDA), permettono di ottenere misure accurate di spessore massico (con cui si indica il prodotto tra densità e spessore $\tau = \rho t$ e viene misurato in g/cm^2) con una buona risoluzione spaziale. Tuttavia esse necessitano di complessi apparati sperimentali, come ad esempio acceleratori lineari per produrre ioni energetici (MeV). Un altro strumento molto utilizzato, per la sua semplicità, è la microbilancia al cristallo di quarzo (QCM); essa fornisce una misura indiretta, in quanto il film dev'essere depositato direttamente sul cristallo di quarzo, in condizioni che simulino il vero deposito. Inoltre

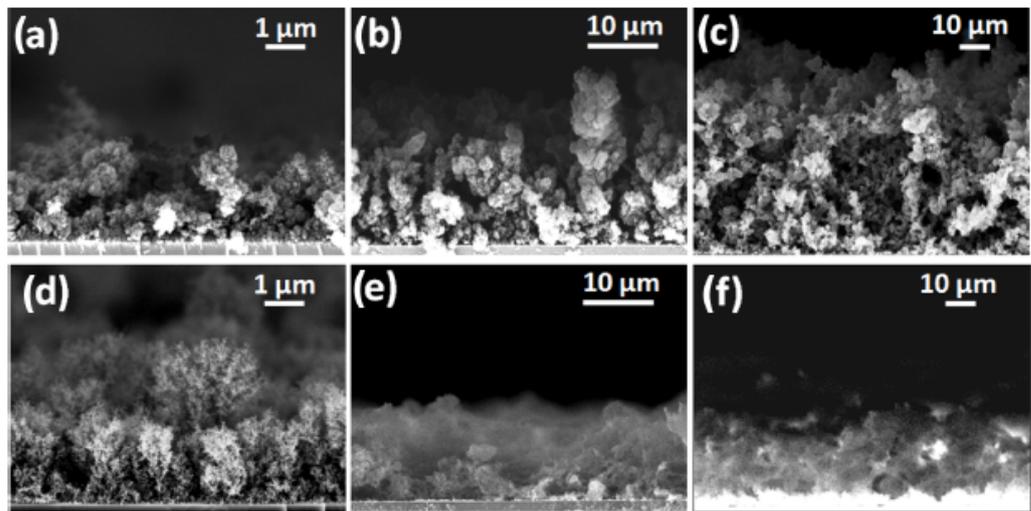


Figura 2.6: Immagini SEM, viste da una sezione trasversale, di campioni depositati in Elio (riga superiore) e in Argon (riga inferiore) a diverse pressioni: (a,d) 30 Pa, (b,e) 100 Pa, (c,f) 500 Pa.

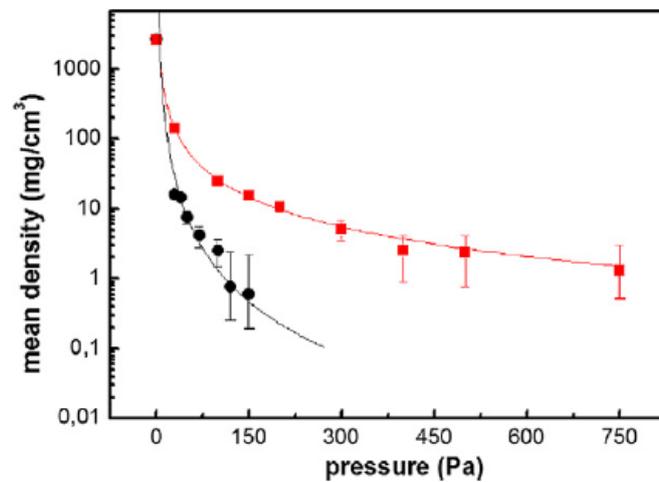


Figura 2.7: Densità media dei film depositati, misurata a pressione di gas in camera: Elio (quadrati rossi) e Argon (cerchi neri).

presenta lo svantaggio di non fornire misure accurate per materiali a bassa densità (sotto i 30 mg/cm^3).

Per questi motivi la misura di densità di schiume di Carbonio risulta particolarmente complicata, perciò è stata appositamente sviluppata una tecnica innovativa che sfrutta la

combinazione di informazioni date da SEM e EDXS [50]. L'intensità di raggi X caratteristici, prodotti da un fascio collimato di elettroni energetici incidente sul film da analizzare, dipende dal numero atomico e dallo spessore massico del film esaminato; è dunque possibile risalire, attraverso un opportuno modello, al valore di τ . Di conseguenza, anche la densità ρ può essere calcolata, misurando lo spessore t con la vista di una sezione trasversale di un immagine SEM.

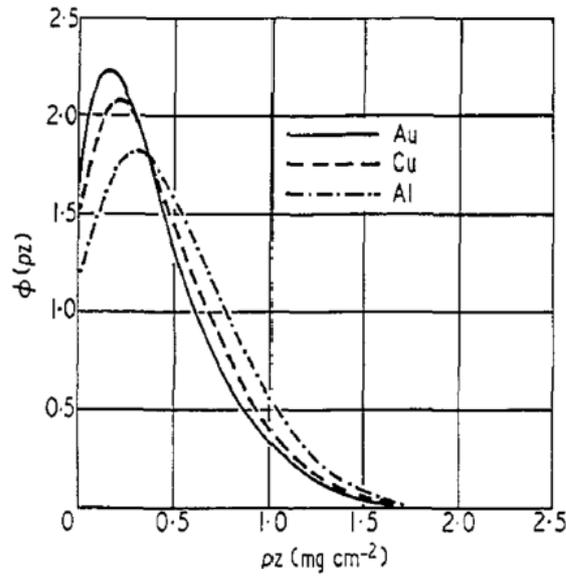


Figura 2.8: Prima *Probability Function for X-ray Production* (PFXP) sperimentale misurata per Oro, Rame e Alluminio da Castaing [51].

Il calcolo dello spessore massico, a partire dall'intensità dei raggi X, richiede la conoscenza della *Probability Function for X-ray Production* (PFXP) $\phi(\sigma)$ (vedi figura 2.8). Questa funzione, introdotta da Castaing [51], descrive la distribuzione, in funzione della profondità massica $\sigma = \rho z$, della ionizzazione primaria indotta da un fascio di elettroni. La PFXP permette di determinare l'intensità di raggi X, $dI_i = \phi_i(\sigma)d\sigma$, emessa da uno strato infinitesimo $d\sigma$ di un elemento con numero atomico Z_i . Integrando tale quantità, considerando anche l'effetto di attenuazione esponenziale di Lambert-Beer, si ottiene l'intensità emessa da un elemento con spessore massico finito $\Delta\tau$:

$$I_i = k \int_{\Delta\tau} C_i \phi_i(\sigma) \exp(-\chi\sigma) d\sigma \quad (2.1)$$

dove C_i è la concentrazione massica dell'elemento i . Il termine $\chi = (\mu/\rho)\text{cosec } \theta$ comprende l'assorbimento della radiazione: μ/ρ è il coefficiente di assorbimento massico e θ l'angolo in cui si trova il rivelatore, rispetto alla normale al campione. Mentre k è una costante che permette di esprimere l'intensità I_i in funzione di un campione di riferimento

di cui si conosce composizione e densità; essa è pari a:

$$k = \frac{I_i^{ref}}{\int_0^{+\infty} C_i^{ref} \phi_i^{ref}(\sigma) \exp(-\chi^{ref} \sigma) d\sigma} \quad (2.2)$$

infatti I_i^{ref} è pari all'intensità prodotta da un elemento i con nota composizione; con la notazione *ref* si indica che le variabili sono riferite al campione di riferimento. Il campione da analizzare dev'essere posto nelle medesime condizioni di quello di riferimento: la misura dev'essere effettuata con lo stesso potenziale, la stessa corrente di elettroni, durata di acquisizione e geometria.

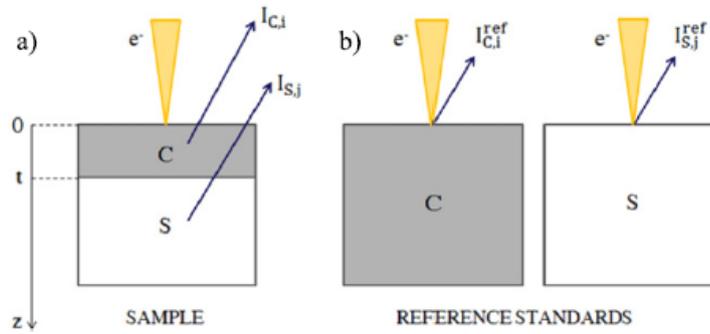


Figura 2.9: Metodi per misurare lo spessore massico di un film tramite EDXS. a) Emissione di raggi X da un *coating* con spessore t e da un substrato, a causa di un fascio di elettroni incidente. b) Emissione di raggi X da un campione di riferimento per il metodo del *coating* e del substrato. Da Prencipe et al. [50].

Come si osserva in figura 2.9, si può utilizzare come *standard* di riferimento sia il materiale di cui è composto il film, sia il materiale da cui è composto il substrato; secondo questa scelta si distinguono dunque due possibili metodi, denominati "del *coating*" e "del substrato". Nel primo caso la relazione 2.1 diventa:

$$\frac{I_{C,i}}{I_{C,i}^{ref}} = \frac{\int_0^t C_i \phi_{C,i}(\sigma) \exp(-\chi_C \sigma) d\sigma}{\int_0^{+\infty} C_i^{ref} \phi_{C,i}^{ref}(\sigma) \exp(-\chi_C^{ref} \sigma) d\sigma} \quad (2.3)$$

dove χ_C e χ_C^{ref} sono i coefficienti di assorbimento di raggi X rispettivamente nel film e nel campione di riferimento. Invece nel metodo del substrato, tenendo conto dell'assorbimento che avviene nel *coating*, si ottiene:

$$\frac{I_{S,i}}{I_{S,i}^{ref}} = \exp(-\chi_C t) \frac{\int_t^{+\infty} C_i \phi_{S,i}(\sigma) \exp[-\chi_S(\sigma - t)] d\sigma}{\int_0^{+\infty} C_i^{ref} \phi_{S,i}^{ref}(\sigma) \exp(-\chi_S^{ref} \sigma) d\sigma} \quad (2.4)$$

Dal momento che si possono misurare tramite EDXS le intensità del riferimento e del campione da analizzare ($I_{C,i}$ e $I_{C,i}^{ref}$ nel caso del metodo del *coating* e $I_{S,i}$ e $I_{S,i}^{ref}$ nell'altro

caso), si possono invertire numericamente le relazioni 2.3 e 2.4 per ottenere il valore di spessore massico τ del film.

Per effettuare questo calcolo è necessario conoscere la funzione $\phi(\rho z)$ e dunque è di fondamentale importanza utilizzare un modello preciso che possa descrivere la funzione per tutti gli elementi da analizzare. E' stato usato [50] un modello proposto da Packwood [52] chiamato *Modified Surface-centered Gaussian* (MSG), il quale si basa sull'ipotesi che gli elettroni si muovono isotropicamente nel campione. Nel modello viene anche tenuto conto della presenza di una componente di elettroni collimati che si muove direzionalmente, fintanto che si trova vicino alla superficie. La forma della distribuzione è quindi:

$$\phi(\sigma) = \gamma \exp(-\alpha^2 \sigma^2) \left[1 - \frac{\gamma - \phi(0)}{\gamma} \exp(-\beta \sigma) \right] \quad (2.5)$$

Questa equazione contiene quattro parametri che descrivono la forma della funzione: γ e α rappresentano rispettivamente l'altezza e l'ampiezza della Gaussiana che descrive il trasporto isotropo degli elettroni nel campione; β tiene conto della popolazione elettronica collimata e quindi definisce la deviazione da una Gaussiana pura vicino alla superficie; mentre $\phi(0)$ è la ionizzazione di superficie, cioè il valore della funzione all'interfaccia.

Per questi parametri si è utilizzata la versione di Rehbach e Karduck [53] (chiamata *RE method*). Questo metodo generalizza il modello MSG fino ai raggi X molli emessi da materiali a basso numero atomico, in base a un grande numero di risultati sperimentali e numerici.

I quattro parametri di forma hanno le seguenti espressioni:

$$\alpha = 2.66 \cdot 10^5 \frac{Z^{1.04}}{AE_0^{1.10}} \left[\frac{\ln(1.166E_0/J)}{E_0 - E_C} \right]^{0.5} \quad (2.6)$$

dove E_0 è l'energia del fascio di elettroni (cioè il potenziale di accelerazione del SEM), E_C è l'energia critica, cioè il potenziale di eccitazione della linea di raggi X caratteristici,, mentre J è il potenziale di ionizzazione, che si può ottenere con la formula di Ruste [54] $J = 0.00929(Z + 1.287Z^{0.333})$. Nel caso in cui il materiale sia composto da più elementi, il parametro si ottiene con una media pesata $\alpha^{-1} = [\sum_i C_i Z_i / A_i \cdot \alpha_i^{-1}] / [\sum_i C_i Z_i / A_i]$.

$$\beta = \begin{cases} 2.20 \cdot 10^5 E_0^{-1.4} [1 + (U_0 - 1)^{-0.77}] \ln(Z - 11), & \text{se } Z \geq 12 \\ 2.08 \cdot 10^5 E_0^{-1.4} [1 + (U_0 - 1)^{-0.77}] \ln(Z), & \text{se } Z < 12 \end{cases} \quad (2.7)$$

dove $U_0 = E_0/E_C$ è noto come *overvoltage ratio*; per il caso multicomponenti si usa la stessa equazione, con un numero atomico efficace Z_{eff} dato dalla media ponderata sulle concentrazioni in massa.

$$\gamma = 2.325(1 + 0.64\eta) \frac{10U_0(\ln U_0 - 10 - U_0^{-0.1})}{\ln U_0(U_0 - 1)} \quad (2.8)$$

dove η è il coefficiente di *backscattering*, definito come la frazione di elettroni retrodiffusi dal campione. Questo parametro si può calcolare con la seguente espressione [55]:

$$\eta = E_0^x [0.19036 - 0.2236 \ln Z + 0.1292 (\ln Z)^2 - 0.01491 (\ln Z)^3] \quad (2.9)$$

$$x = 0.1382 - 0.9211 Z^{-0.5} \quad (2.10)$$

anche in questo caso in campioni multicomponenti il parametro η si calcola come la media ponderata sulle concentrazioni massiche.

$$\phi(0) = 1 + b \left[1 - \frac{1}{\sqrt{U_0}} \right]^a \quad (2.11)$$

$$a = (1 + 0.005 Z/E_C)(0.68 + 3.7/Z) \quad (2.12)$$

$$b = (1 + 0.005/E_C)(-0.01 + 0.04805 Z - 0.515 \cdot 10^{-3} Z^2 + 0.20802 \cdot 10^{-5} Z^3) \quad (2.13)$$

di nuovo, per più elementi nel campione, i parametri si calcolano con uno Z_{eff} .

La tecnica è stata validata grazie al confronto di misure effettuate tramite QCM e EDXS su un film compatto di Argento (con densità prevista pari a 10.49 g/cm^3). È evidente dai risultati, mostrati in figura 2.10, che esiste un *range* ottimo di voltaggio in cui le misure ottenute con EDXS non variano con il voltaggio. In questo intervallo le deviazioni dal valore ottenuto con QCM corrispondono al 10% per il metodo del substrato e al 25% per il metodo del *coating*.

Questi elevati errori sono probabilmente associati alla scelta del modello della PFXP, infatti lo spessore massico viene calcolato invertendo le relazioni 2.1 e 2.3, nelle quali compare direttamente la distribuzione: usando diverse definizioni di PFXP la misura può dare risultati molto differenti ed è di fondamentale importanza utilizzare un modello accurato per essa. Un'altra possibile causa di errore è data dal fatto che i campioni analizzati sono composti da due strati di materiale con diverso numero atomico e densità; è stato dimostrato che campioni multistrato possono portare delle distorsioni nella $\phi(\rho z)$ [56], soprattutto quando i materiali sono molto "lontani" nella tavola periodica, e perciò ci si aspetta che le misure siano meno affidabili nel caso di $\Delta Z = |Z_{sub} - Z_{coat}|$ elevato (>10).

Poiché in generale il metodo del substrato mostra un basso errore di misura, esso è stato utilizzato per caratterizzare le schiume di carbonio descritte nel paragrafo 2.2.2 e 2.3.2. In figura 2.11 sono mostrati i dati ottenuti da misurazioni di densità di campioni di schiume, mediante QCM e EDXS [48]; quello che si osserva è che per densità inferiori, i valori ottenuti con QCM sono non realisticamente bassi: difatti la microbilancia perde sensibilità a causa della struttura molto porosa della schiuma, la quale smorza le oscillazioni del risonatore al cristallo di quarzo e dunque disaccoppia il film dalla microbilancia. Al contrario il metodo del substrato mostra una più plausibile saturazione della densità per pressioni di gas crescenti, il che è comune in questo tipo di processi di deposizione. Per

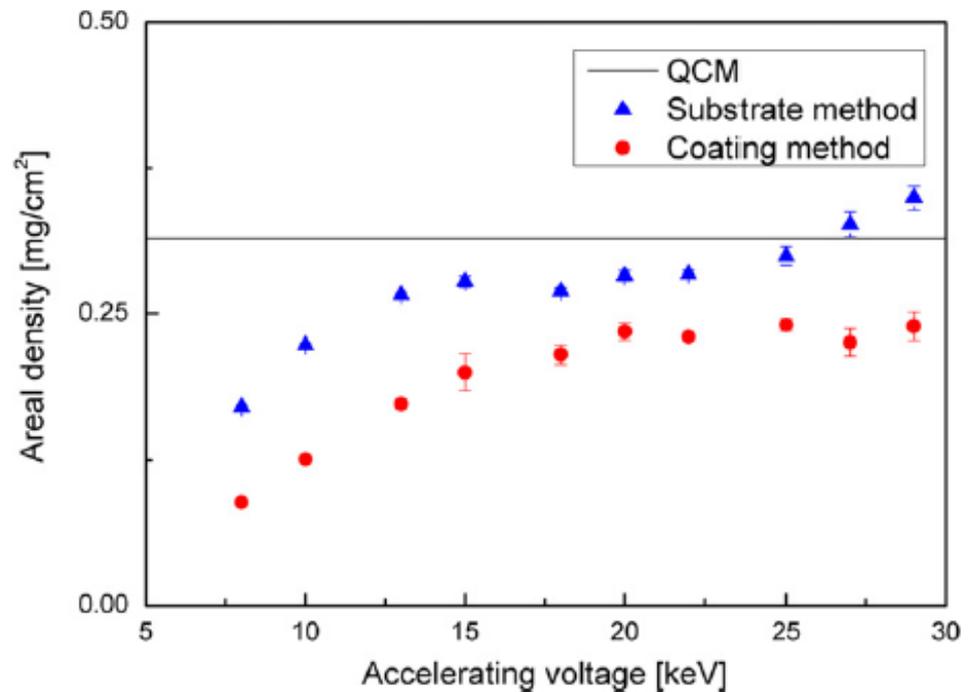


Figura 2.10: Spessore massico di un film sottile di Argento depositato su un substrato di Oro misurato tramite QCM (in nero) e EDXS (in blu attraverso il metodo del substrato, in rosso attraverso il metodo del *coating*), in funzione del voltaggio di accelerazione. Da Prencipe et al. [50].

questo motivo è in generale preferibile usare questa tecnica per caratterizzare film molto porosi, di densità inferiore ai $\sim 30 \text{ mg/cm}^3$.

2.4 Strumenti di diagnostica di ioni accelerati da laser

2.4.1 Rivelatori di particelle cariche

In esperimenti di accelerazione di ioni accelerati da impulsi laser superintensi è fondamentale rivelare e analizzare le particelle accelerate. In particolare il meccanismo TNSA genera ioni con peculiari proprietà (vedi sezione 1.4): spettro continuo esponenziale, alto numero di particelle, breve durata temporale, alta laminarità e alto angolo di divergenza. Queste proprietà richiedono degli specifici rivelatori, in grado di determinare i parametri fondamentali per l'analisi del processo; i più importanti tra questi, sono la forma dello spettro energetico e la relativa energia massima.

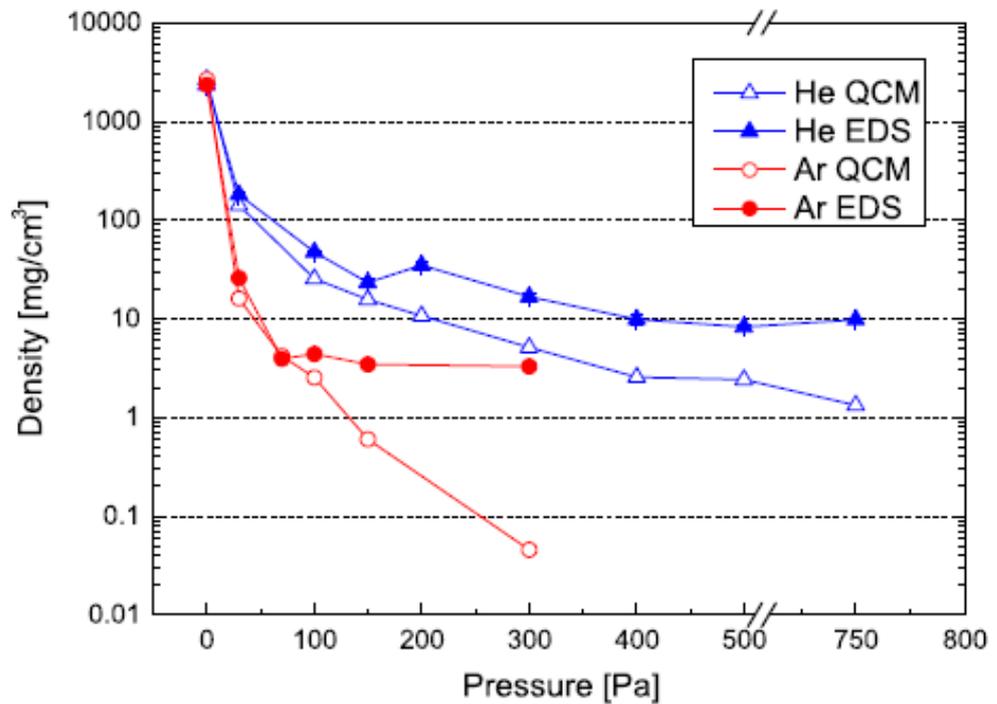


Figura 2.11: Densità delle schiume di carbonio misurate con QCM (simboli pieni) e con il metodo del substrato (simboli vuoti) in funzione del gas (Elio in blu, Argon in rosso) della relativa pressione in camera. Da Prencipe et al. [50].

Tra gli strumenti più utilizzati figurano i film radiocromici (RCF); essi sono stati usati fin dal 2000 [8] a causa della loro semplicità d'uso e del loro elevato *range* dinamico. Consistono in uno strato attivo, contenente una dispersione microcristallina, depositato su un substrato plastico; l'interazione con radiazioni direttamente ionizzanti causa la polimerizzazione del film che cambia colore, dal bianco al blu. La variazione nella densità ottica viene misurata e calibrata rispetto alla dose rilasciata nel film.

Generalmente questi rivelatori vengono utilizzati in pila con degli strati di Alluminio; infatti lo strato metallico si comporta da filtro passa-alto e permette solo agli ioni con energia $E > E_B$ di passare, dove E_B è l'energia degli ioni che raggiungono il picco di Bragg all'interno del foglio di Alluminio (vedi figura 2.12 (a)). Poiché la curva di deposizione di dose degli ioni ha la peculiare forma del picco di Bragg (mostrata in figura 2.12 (b)), nel singolo film radiocromico la maggior quantità di dose sarà ceduta proprio dagli ioni con $E \sim E_B$ e quindi si può facilmente ottenere uno spettro di prima approssimazione, associando ad ogni film un'energia. Sono state sviluppate anche numerose tecniche più precise per deconvolvere lo spettro [57].

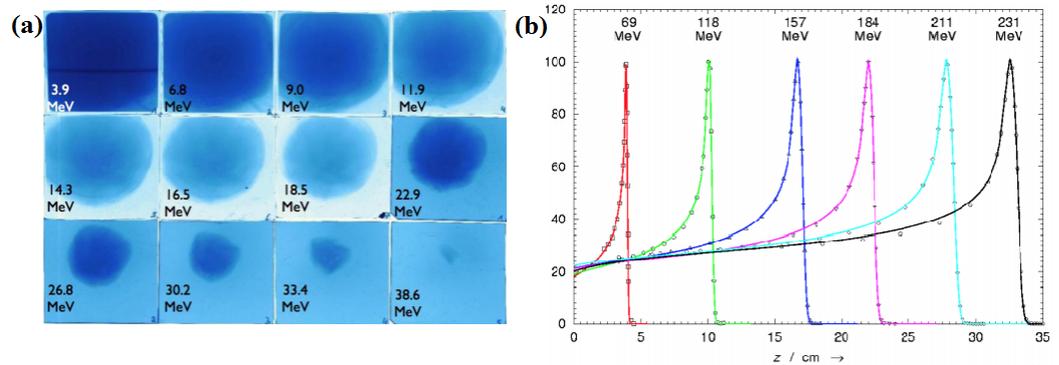


Figura 2.12: (a) Sequenza di film RCF esposti a un fascio di protoni generato dalla *facility laser* PHELIX. Il numero corrisponde all'energia E_B . (b) Curve di deposizione di dose di protoni di diversa energia in funzione della profondità (picco di Bragg).

Similmente vengono usati rivelatori plastici di tracce, come i CR39, i quali hanno il vantaggio di non essere sensibili a elettroni e raggi X. Per poter rendere visibili le tracce lasciate dagli ioni energetici, essi richiedono un processo di bagno chimico, detto *etching*. In seguito a questa operazione è possibile contare le singole tracce lasciate dalle particelle, che, per alti flussi, si sovrappongono portando a saturazione il rivelatore.

Una tecnica che virtualmente non va a saturazione è quella di attivazione nucleare. Essa sfrutta il fenomeno di reazioni nucleari tra fascio generato e un bersaglio; le reazioni producono elementi radioattivi che emettono specifiche radiazioni che vengono misurate con metodi convenzionali. Le reazioni più utilizzate sono (p, n) che hanno soglie intorno a 4-6 MeV; anche in questo caso mettendo più fogli in pila si può filtrare il fascio e ottenere informazioni sullo spettro energetico, alternativamente si possono sfruttare reazioni con soglie differenti in un unico rivelatore. Ad esempio vengono usati fogli di rame che per reazione ${}^{63}\text{Cu}(p, n){}^{63}\text{Zn}$ formano un isotopo di Zinco che decade β^+ ; il positrone annichila ed emette due fotoni di energia 511 keV che vengono rivelati da un rivelatore a NaI con modulo di coincidenza.

Nonostante queste tecniche permettano di ottenere un'elevata risoluzione spaziale, sono strumenti passivi e necessitano di un'elaborazione in seguito all'irraggiamento; questa caratteristica rende difficile l'uso dei rivelatori passivi per le future applicazioni ad alta frequenza di ripetizione e per sistemi laser già esistenti, funzionanti a media frequenza (laser a impulsi ultrabrevi ~ 30 fs). Per questo motivo sono state sviluppate tecniche attive, in grado di processare istantaneamente i dati. Ad esempio vengono usati scintillatori organici, con diversa lunghezza d'onda di emissione, posizionati in pila, in modo da misurare le dimensioni trasversali del fascio, per un numero finito di *range* energetici (vedi figura 2.13). La luce emessa dai diversi scintillatori viene raccolta da una CCD; per

separare le diverse lunghezze d'onda vengono usati uno o due prismi di Fresnel, insieme a due o quattro filtri ottici in modo da ottenere diverse immagini. Lo svantaggio di questo strumento è dato dalla minor risoluzione spaziale rispetto agli RCF e al fatto che i *range* energetici devono essere in numero finito e generalmente non si può andare oltre 4.

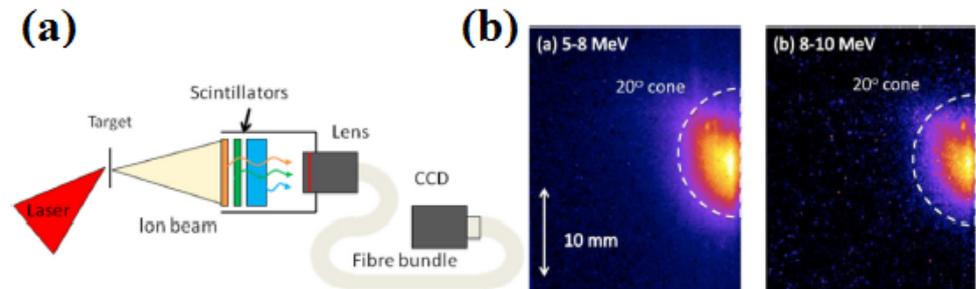


Figura 2.13: (a) Schema di funzionamento di rivelatori a scintillazione. Il fascio di ioni incide su diversi scintillatori in funzione dell'energia; la luce dei rivelatori viene filtrata e raccolta da una CCD. (b) Profilo trasversale di un fascio di protoni, ottenuto con un rivelatore a scintillazione con una finestra a due energie, generato irraggiando un bersaglio di 100 nm di Alluminio a intensità $\sim 5 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$ con alto contrasto ($> 10^9$). È possibile osservare che la componente più energetica del fascio è caratterizzata da un angolo di divergenza inferiore.

Per ricavare spettri ad alta risoluzione energetica si usano invece spettrometri a deflessione magnetica; in generale questi strumenti sfruttano dei collimatori per selezionare una piccola parte del fascio, dunque non forniscono informazioni riguardo la distribuzione spaziale trasversale e sono generalmente usati in parallelo a tecniche come gli RCF. Nell'apparato più semplice essi sfruttano la componente magnetica della forza di Lorentz $\mathbf{F}_L = q\mathbf{E} + q\mathbf{v} \times \mathbf{B}$, che deflette a diversi angoli le diverse componenti spettrali, grazie a elevati campi magnetici $\sim 1 \text{ T}$. Questo strumento non permette di discriminare ioni con diverso rapporto carica/massa e quindi è adeguato per la diagnostica di spettri con componente di protoni dominante rispetto alle altre specie. Un rivelatore più accurato e molto utilizzato è lo spettrometro a Parabola Thomson, descritto in dettaglio nel prossimo paragrafo.

2.4.2 Spettrometro a Parabola Thomson

Lo spettrometro a Parabola Thomson è uno strumento molto utilizzato nel campo di accelerazione di ioni da laser, che permette di ottenere spettri energetici ad alta risoluzione di particelle cariche energetiche, e di discriminare particelle in base al loro rapporto ca-

rica/massa; con questo rivelatore è quindi possibile distinguere gli spettri delle diverse specie accelerate.

In figura 2.13 è mostrato lo schema di un tipico apparato: attraverso un collimatore solo una piccola parte del fascio viene selezionata, in modo da avere ioni con emittanza trasversale molto ridotta, ed essa viene deflessa da un campo elettrostatico e uno magnetostatico paralleli tra loro. I valori tipici di campo elettrico sono di $\sim 10^4$ V/cm, mentre per il campo magnetico si ha generalmente ~ 1 T. Le particelle deflesse incidono su un rivelatore che può essere un CR39, un *image plate* (IP), un *microchannel plate* (MCP). Quest'ultimo viene usato in sistemi ad alta frequenza di ripetizione in quanto permette la rivelazione attiva, attraverso una CCD.

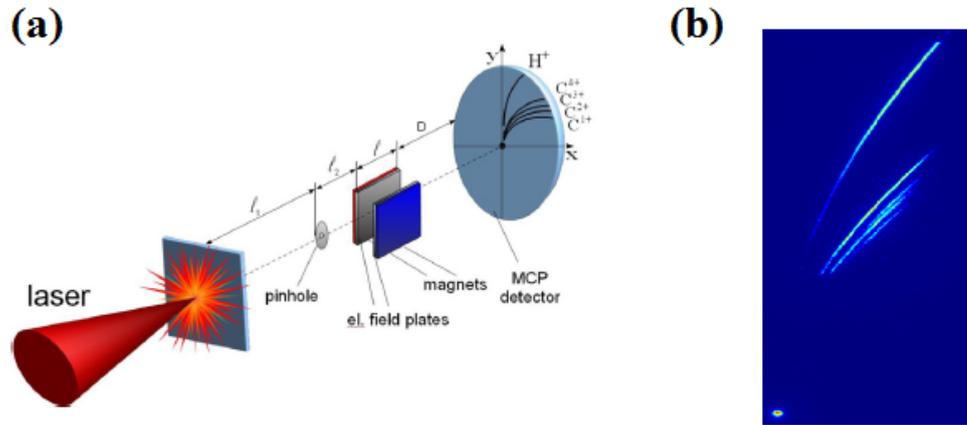


Figura 2.14: (a) Apparato sperimentale di uno spettrometro a Parabola Thomson. La deflessione è effettuata tramite un campo elettrostatico, generato da un condensatore piano, e magnetostatico, generato da una bobina. Le particelle deflesse sono rivelate da uno schermo a fosfori e da una CCD. (b) Tipica immagine CCD di uno spettrometro a Parabola Thomson.

Nell'ipotesi di piccole deflessioni si calcolano le coordinate (rispetto al punto di deflessione nulla) della particella con rapporto carica/massa (Z/M) ed energia K :

$$x = Ze \frac{B}{\sqrt{MK}} \frac{lD}{\sqrt{2}} \quad (2.14)$$

$$y = Ze \frac{E}{K} \frac{lD}{2} \quad (2.15)$$

in cui l è la dimensione spaziale del campo elettrico e magnetico, mentre D è la distanza dallo schermo (vedi figura 2.14). Esprimendo K in funzione di x e sostituendo in y si ottiene l'equazione:

$$y = \frac{1}{e} \frac{M}{lD} \frac{E}{Z} \frac{1}{B^2} \cdot x^2 \quad (2.16)$$

Ciò significa che, quando il fascio ha spettro continuo, sullo schermo del rivelatore viene tracciata una parabola; si osserva che le specie con rapporto Z/M maggiore (protoni e specie altamente ionizzate) formano parabole più aperte.

Una volta individuata la specie ionica è possibile ottenere lo spettro invertendo la relazione 2.14 o 2.15. Da queste equazioni si evince che le componenti spettrali più energetiche si trovano più vicine al punto di deflessione nulla, il quale appare nelle immagini come un punto luminoso. Esso si forma a causa di tutte le particelle che non possiedono carica e dunque non vengono deflesse, come fotoni e particelle neutre.

La risoluzione delle parabole è data principalmente dal diametro del fascio e quindi dal diametro del collimatore. La sua dimensione pone quindi delle restrizioni alla possibilità dello spettrometro di distinguere diverse specie ioniche, infatti per ioni molto energetici e bassa risoluzione le parabole si sovrappongono. In prima approssimazione la larghezza della parabola è data da

$$\delta = d \frac{l_1 + l_2}{l_1} \quad (2.17)$$

dove d è il diametro del *pinhole*, l_1 e l_2 sono rispettivamente le distanze bersaglio-collimatore e collimatore-rivelatore.

Bisogna considerare inoltre gli effetti di frange dei campi E e B , infatti campi non omogenei possono dare effetti di accelerazione di particelle e deflessione aggiuntiva. In ogni modo è possibile interpolare le parabole e ricavare un campo efficace B in funzione di E , quando il campo elettrico è noto con buona precisione.

2.5 Obiettivi della tesi

Gli studi teorici e sperimentali (vedi paragrafo 1.4.4) hanno dimostrato le potenzialità di bersagli multistrato con densità *near-critical* rispetto alla possibilità di aumentare l'energia massima di ioni accelerati mediante impulsi laser superintensi e ultrabrevi. Tuttavia lo stato attuale delle conoscenze presenta ancora numerosi punti aperti, sia dal punto di vista interpretativo sia con riferimento alla possibilità di conseguire energie ancora maggiori.

Scopo principale di questo lavoro di tesi è stato dunque produrre e caratterizzare bersagli *multilayer* nanostrutturati per la campagna sperimentale di irraggiamento avvenuta nel luglio 2015 al *Gwangju Institute of Science and Technology*, in Corea del Sud, e in seguito di analizzare i risultati dell'esperimento a partire dai dati acquisiti da rivelatori a Parabola Thomson.

Nel capitolo 3 viene approfondita la tecnica basata sui dati acquisiti mediante EDXS, per la valutazione della densità e vengono descritti sviluppi volti a migliorare l'accuratezza della misura, sia per film compatti che per film porosi. Ciò viene compiuto nell'ottica di caratterizzare bersagli multistrato con maggior precisione, in quanto la densità del film di schiuma di Carbonio risulta essere difficile da misurare con le tecniche convenzionali

(vedi paragrafo 2.3.3), mentre, al contrario, la tecnica basata su EDXS presenta un elevato errore di misura. Nello specifico sono affrontate le problematiche della tecnica: la bassa accuratezza del modello che descrive la PFXP e le distorsioni indotte, in questa distribuzione, da campioni multistrato, con variazioni importanti di numero atomico ($\Delta Z > 10$) e densità. A queste problematiche sono state proposte delle soluzioni e ne sono mostrati i relativi risultati, sia nel caso di film compatti, sia nel caso dell'applicazione alle schiume di Carbonio. Questo capitolo costituisce il lavoro di approfondimento per il programma ASPRI del corso di Laurea Magistrale di Ingegneria Nucleare, che ho frequentato.

Nel capitolo 4 viene poi descritto nel dettaglio, il lavoro di deposizione e caratterizzazione dei bersagli multistrato al quale ho partecipato attivamente. Esso si basa sui risultati degli anni precedenti nel produrre film nanostrutturati di Carbonio di bassa densità, illustrati nei paragrafi 2.2 e 2.3, sviluppati al Laboratorio di Materiali Micro- e Nanostrutturati (NanoLab); inoltre in esso vengono integrati i miglioramenti alla tecnica di caratterizzazione, sviluppati nel capitolo 3. Il capitolo presenta anche l'apparato sperimentale della *facility laser* del *Centre of Relativistic Laser Science (CoReLS)*, dove sono stati irraggiati i bersagli prodotti; per poter analizzare i relativi risultati sono stati utilizzati 4 spettrometri a Parabola Thomson, il cui segnale era, negli anni precedenti, elaborato tramite un *software* coreano che presentava diverse problematiche. Per questo motivo è stato sviluppato un programma, nell'ambito di questa tesi, in grado di processare, in modo più efficiente e preciso, i dati dei rivelatori. Infine vengono analizzati, in via preliminare, i risultati ottenuti dall'irraggiamento dei campioni multistrato.

Capitolo 3

Sviluppo della tecnica basata su EDXS per la valutazione della densità di film sottili

3.1 Introduzione

La tecnica *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (EDXS), introdotta nei paragrafi 2.3.1 e 2.3.3, permette di ottenere misure di spessore massico (pari al prodotto di densità per spessore, $\tau = \rho t$) di film sottili attraverso un apparato sperimentale comune (SEM) e usato in molti laboratori. Rispetto alle tecniche di tipo nucleare, il vantaggio della tecnica è dato infatti dall'apparato molto più semplice, dal tempo di misura ridotto e da una maggior facilità d'uso. Inoltre essa risulta necessaria quando altre tecniche di misura convenzionali non sono utilizzabili per diversi motivi; nello specifico ciò avviene nel caso di schiume di Carbonio, per le quali la QCM non fornisce dati affidabili a causa della porosità delle schiume, la quale smorza le oscillazioni del risonatore al cristallo di quarzo e dunque disaccoppia il film dalla microbilancia.

Tuttavia, lo stato attuale di questo metodo presenta diversi limiti e problematiche: l'accuratezza della misura non è molto elevata (si stima un errore del 10% per il metodo del substrato e 25% per il metodo del *coating*), inoltre l'imprecisione può aumentare ulteriormente a causa di alcuni specifici effetti. In particolare, come affermato nel paragrafo 2.3.3, questi elevati errori sono probabilmente associati alla scelta del modello della *Probability Function of X-rays Production* (PFXP) $\phi(\rho z)$, infatti lo spessore massico viene calcolato invertendo le relazioni 2.1 e 2.3, nelle quali compare direttamente la distribuzione: usando diverse definizioni per la $\phi(\rho z)$ la misura può dare risultati molto differenti

ed è di fondamentale importanza utilizzare un modello accurato per essa. Un'aggiuntiva causa di errore è data dal fatto che i campioni analizzati sono composti da due strati di materiale con diverso numero atomico e densità; è stato dimostrato che campioni multistrato possono portare delle distorsioni nella PFXP [56], soprattutto quando i materiali sono molto "lontani" nella tavola periodica, e perciò ci si aspetta che le misure siano meno affidabili nel caso di $\Delta Z = |Z_{sub} - Z_{coat}|$ elevato (>10).

Per risolvere tali problematiche la tecnica viene sviluppata lungo diverse direzioni (sezione 2.2): sono proposti modelli alternativi e più accurati per la PFXP, i quali sfruttano sia approcci semiempirici che approcci che simulino più efficacemente la fisica del problema (codici Montecarlo). Inoltre viene descritto un semplice modello che, utilizzando il fattore di *backscattering* di elettroni (frazione di particelle retrodiffuse dal campione), possa correggere gli effetti dovuti al diverso numero atomico dei campioni multistrato.

Infine viene implementato un modello basato sulla risoluzione di una semplificazione dell'equazione del trasporto di Boltzmann. Ciò è fatto con l'obiettivo di risolvere i limiti della tecnica con un unico modello: esso infatti permette di descrivere efficacemente tutti gli effetti di trasporto di elettroni energetici nella materia e di ottenere $\phi(\rho z)$ più precise anche nel caso di campioni multistrato. Tuttavia il modello presenta delle problematiche dovute al metodo di implementazione (alle differenze finite) che non permette di descrivere forti distorsioni nella PFXP, dovute ad elevato ΔZ e $\Delta\rho$.

Nella seconda parte di questo capitolo (sezione 2.3) sono presentati risultati di questi sviluppi nella determinazione della densità di film di diversa morfologia. In particolare sono confrontate le misure, effettuate con questi miglioramenti, a quelle ottenute con QCM, nel caso di film compatti. La tecnica viene dunque applicata alla misura di campioni di schiume di Carbonio, per ottenere misure di accuratezza aumentata rispetto alla tecnica *standard*.

3.2 Sviluppo della tecnica

3.2.1 Modelli alternativi per *Probability Function of X-ray Production* (PFXP)

Allo stato attuale del metodo basato su EDXS, viene utilizzato il modello analitico di *Modified Surface-centered Gaussian* (MSG), illustrato nel paragrafo 2.3.3, con i parametri di Packwood [52] (detto metodo RE). L'utilizzo di questo modello è una delle maggiori fonti di errore della tecnica, in quanto non descrive in modo preciso la PFXP; per questo motivo sono stati proposti, in questo lavoro di tesi, modelli alternativi, presenti in letteratura, che possano fornire una funzione più aderente alla realtà sperimentale.

Innanzitutto è importante notare che il modello MSG è di tipo semiempirico e viene usato in letteratura con diverse formulazioni dei parametri α , β , γ , ϕ_0 , in funzione del sistema che si vuole descrivere; perciò vengono scelti diversi *set* dei parametri in funzione dell'energia dei raggi X e del *range* di energia di elettroni. Dunque sono state inizialmente usate diverse formulazioni dei parametri del modello, con l'obiettivo di ottenere $\phi(\rho z)$ più accurate, in particolare sono stati usati i parametri di Bastin et al. [58], definiti come segue:

$$\alpha = \frac{1.75 \cdot 10^5}{E_0^{1.25}(U_0 - 1)^{0.55}} \left[\frac{\ln(1.166E_0/J)}{E_c} \right]^{0.5} \quad (3.1)$$

$$\beta = \alpha \frac{Z^n}{A}, \quad \text{con } n = \frac{Z}{0.4765 + 0.5473 \cdot Z} \quad (3.2)$$

$$\gamma = \begin{cases} 1 + \frac{U_0 - 1}{0.3384 + 0.4742 \cdot (U_0 - 1)}, & \text{per } 1 \leq U_0 \leq 3 \\ \frac{5\pi(U_0 + 1)}{U_0 \ln(U_0 + 1)} [\ln(U_0 + 1) - 5 + 5(U_0 + 1)^{-0.2}], & \text{per } U_0 > 3 \end{cases} \quad (3.3)$$

$$\phi_0 = 1 + \left(1 - \frac{1}{\sqrt{U_0}} \right)^{a \cdot b}, \quad (3.4)$$

$$\text{con } a = (1 + 0.005Z/E_c)(0.68 + 3.7/Z), \quad (3.5)$$

$$\text{e } b = (1 + 0.005/E_c)(-0.01 + 0.04805 \cdot Z - 0.515 \cdot 10^{-3} \cdot Z^2 + 0.208 \cdot 10^{-5} \cdot Z^3) \quad (3.6)$$

dove J viene calcolato con la formula di Ruste (vedi paragrafo 2.3.3). Questa formulazione dei parametri sembra preferibile a quella di Packwood [52], infatti da figura 3.1 si osserva un miglior accordo della PFXP con i dati sperimentali; tuttavia il modello MSG, come anche altri modelli semiempirici presenti in letteratura, non dà una descrizione completa del processo fisico e ha importanti limiti di validità, dati dai parametri di lavoro.

Per questo motivo è stato proposto un codice, che sfrutta un metodo Montecarlo (CASINO) [59][60], in grado di descrivere con completezza il processo fisico e di elaborare una $\phi(\rho z)$ più precisa. Nello specifico il programma funziona nel seguente modo: viene seguito il percorso del singolo elettrone energetico che viene diffuso, attraverso collisioni coulombiane binarie, nel campione di composizione nota (che può anche essere multistrato). L'elettrone, mediante gli urti causa ionizzazioni primarie, che a loro volta producono raggi X caratteristici, per transizioni di elettroni legati di *shell* più esterne a quelle più interne.

In figura 3.1 sono rappresentate le PFXP ottenute i diversi modelli analitici e numerici descritti in questo lavoro di tesi e con il metodo sperimentale dei traccianti [51], per un campione di Alluminio all'energia di 10 keV di elettroni. Questa figura mostra la bassa precisione dei modelli analitici nel descrivere la funzione, mentre presenta affidabilità maggiore nel caso di CASINO; in quest'ultimo caso, la corrispondenza del modello con la funzione sperimentale è visibile soprattutto vicino all'interfaccia, che è il punto che influenza maggiormente la misura, infatti, come si può vedere dalle relazioni 2.3 e 2.4, la

funzione $\phi(\rho z)$ è modulata da un termine esponenziale, il quale attenua l'errore dovuto al modello a elevate profondità.

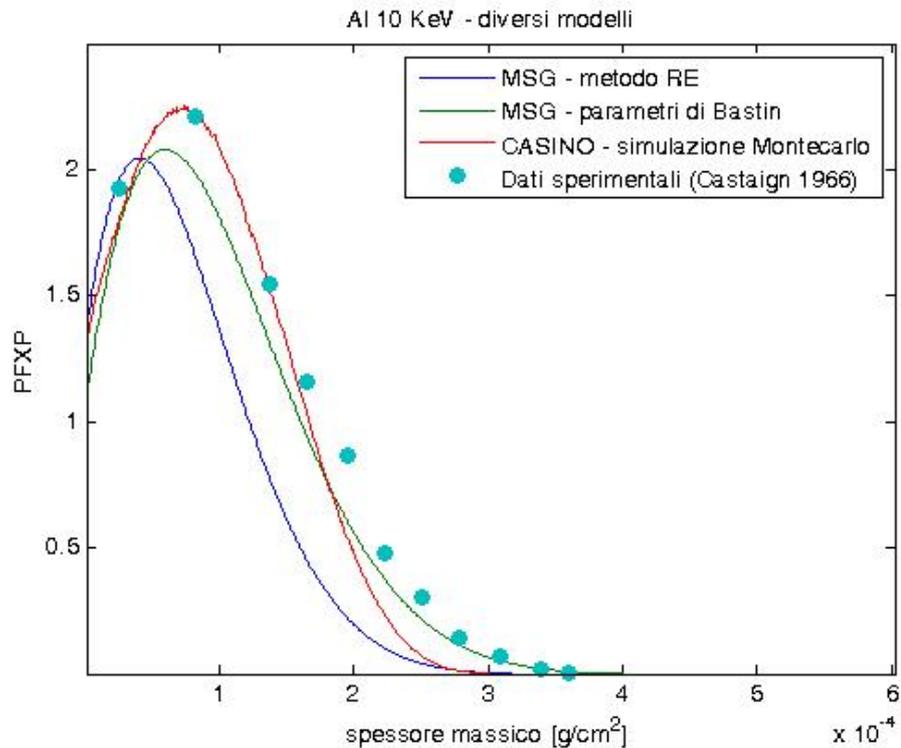


Figura 3.1: Sono mostrate le PFXP di Alluminio ($Z=13$, riga K, $E_c=1.486 \text{ keV}$) ottenute con due modelli semiempirici, di Bastin e di Packwood e Brown (metodo RE), con CASINO e attraverso il metodo dei traccianti usato per la prima volta da Castaing [51]; il potenziale di accelerazione è di 10 kV .

Nonostante il miglior accordo del metodo Montecarlo con i dati sperimentali, esso comporta una procedura non automatica per poter misurare lo spessore massico di un film. Essa consiste nel simulare, con un numero significativo di elettroni per ridurre il rumore statistico (sopra 10000), il sistema di riferimento, a seconda che si scelta il metodo del substrato o del *coating* (di cui è necessario conoscere, numero atomico, densità, voltaggio di accelerazione del SEM). Al termine della simulazione, della durata di qualche minuto, è necessario esportare dal programma i dati relativi alla PFXP, i quali vanno in seguito interpolati; in particolare si è osservato che queste funzioni vengono descritte perfettamente da *fit* bigaussiani, i cui 6 parametri vengono dunque inseriti in un apposito *software* che inverte numericamente le relazioni 2.3 e 2.4 a partire dalla definizione di $\phi(\rho z)$. Questa procedura è da ripetere ogni volta che vengono cambiate le condizioni del sistema da

misurare, come ad esempio nel caso in cui si voglia modificare l'energia degli elettroni del SEM.

Poichè tutti questi passaggi richiedono un tempo relativamente lungo la tecnica perde una delle sue proprietà fondamentali, cioè la velocità di misura ed elaborazione. Per questo motivo sono stati cercati i parametri di lavoro (numero atomico, voltaggio di accelerazione) per i quali il modello MSG, metodo RE, fornisce PFXP più accurate, utilizzando come riferimento i dati elaborati dal codice Montecarlo. L'analisi è stata effettuata calcolando la norma L2 tra le funzioni $\phi(\rho z)$ calcolate con il metodo RE e quelle simulate con CASINO per i valori di energia 2, 5, 10, 20, 30 keV e per i numeri atomici pari a 13 (Al), 29 (Cu), 47 (Ag), 74 (W), 79 (Au). Ci si aspetta che nei casi in cui la norma sia maggiore la tecnica con PFXP analitica calcoli un valore di spessore massico con errore più elevato.



Figura 3.2: sono mostrati i valori della norma L2 tra le PFXP ottenute con il metodo RE e con l'interpolazione delle simulazioni Montecarlo, la norma è stata calcolata suddividendo le curve in successioni di 500 valori; gli elementi analizzati sono Al ($Z=13$, riga K, $E_c=1.486$ keV), Cu ($Z=29$, riga LIII, $E_c=0.94$ keV), Ag ($Z=47$, riga LIII, $E_c=2.98$ keV), W ($Z=74$, riga MV, $E_c=1.8$ keV), Au ($Z=79$, riga MV, $E_c=2.1$ keV) con i valori di energia degli elettroni incidenti di 2, 5, 10, 20, 30 keV. Poiché l'energia critica dell'argento e dell'oro è superiore a 2 keV, non vengono prodotti raggi X nel caso di energia degli elettroni di 2 keV e dunque il primo valore è stato imposto uguale a 0.

I risultati di questa analisi (vedi figura 3.2), mostrano che in generale l'accordo tra le due funzioni è maggiore per energie più vicine all'energia critica (energia del picco X

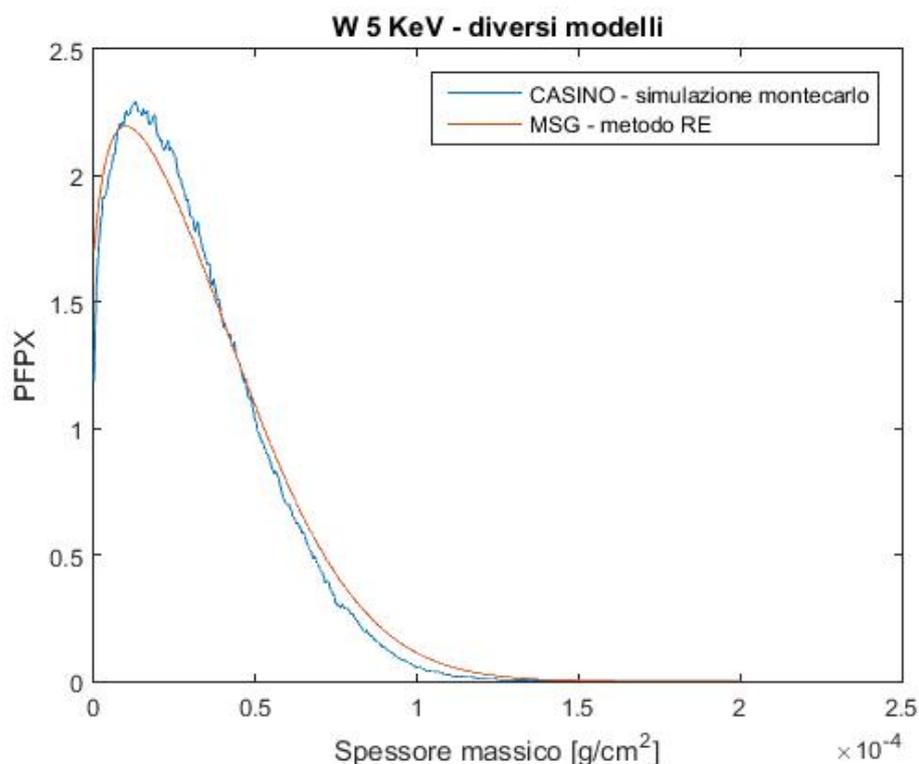


Figura 3.3: Sono mostrate le PFPX ottenute con un campione di Tungsteno ($Z=74$, riga MV, $E_c=1.8 \text{ keV}$) con il metodo RE e con CASINO, il potenziale di accelerazione è pari a 5 keV .

analizzato) e per numero atomico maggiore; il caso di figura 3.3, dove sono rappresentate le PFPX ottenute con il modello semiempirico e il metodo Montecarlone, per un campione composto di Tungsteno, all'energia di 5 keV , mostra infatti che le due curve coincidono. Come regola generale si può dunque affermare che, per basso voltaggio e alto numero atomico del campione di riferimento, non è necessario utilizzare la lunga procedura che coinvolge il programma CASINO, in quanto è possibile ottenere, con il modello MSG, risultati con un basso errore e con un tempo di elaborazione notevolmente ridotto.

3.2.2 Modello correttivo per campioni multistrato

La tecnica basata su EDXS allo stato attuale si basa sull'ipotesi che il film sottile non alteri la $\phi(\rho z)$ del riferimento; questa risulta esser un'ulteriore causa di errore, in particolare per i sistemi multistrato ad alto ΔZ . Infatti il trasporto degli elettroni nel campione è dovuto in larga parte alle collisioni coulombiane tra elettroni e nuclei, e la sezione d'urto di questo fenomeno dipende dal numero atomico; perciò quando la differenza di numero

atomico diventa elevata (>10) le distorsioni della PFXP non possono più essere trascurate [56].

E' stata proposta una soluzione a questo problema con un semplice modello basato sull'utilizzo del coefficiente di *backscattering*, definito come la frazione di elettroni retrodiffusi dal campione rispetto a quelli entranti $\eta_b = I_b/I_0$, dove I_0 e I_b sono rispettivamente la fluena di elettroni emessi dal SEM e retrodiffusi dal campione. Facendo riferimento al campione multistrato di figura 3.4 di Tungsteno su Silicio, si osserva come il *coating* modifichi sostanzialmente la funzione $\phi(\rho z)$, abbassandola rispetto al caso di solo substrato, ciò può essere imputato in prima approssimazione alla perdita di energia da parte del sistema a causa degli elettroni retrodiffusi. Infatti il Tungsteno a causa del suo alto Z e della sua elevata densità, incrementa il coefficiente di *backscattering* del campione multistrato e dunque l'energia depositata in esso sarà inferiore, così come la produzione di raggi X (dipendente dall'energia depositata); se i raggi X misurati sono inferiori rispetto a quelli previsti si avrà una netta sottostima dello spessore massico ottenuto mediante i dati EDXS.

Come si vede da figura 3.4, la PFXP è stata semplicemente moltiplicata per un fattore correttivo portando a risultati molto soddisfacenti. Il modello che permette di calcolare questo coefficiente è semplicemente espresso da un bilancio energetico in corrispondenza dell'interfaccia vuoto-substrato (vedi figura 3.5), nell'ipotesi di attenuazione e diffusione nulla, e di *backscattering* completamente localizzato all'interfaccia:

$$I_0 E_0 - I_b E_b = I_d E_d \quad (3.7)$$

$$I_0 - I_b = I_d \quad (3.8)$$

Usando la definizione di η_b , si ottiene:

$$E_0 - E_b \eta_b = E_d \quad (3.9)$$

Cioè l'energia media depositata nel materiale per ogni elettrone è minore dell'energia dell'elettrone incidente. Se il coefficiente di *backscattering* cresce, l'energia depositata diminuisce e la PFXP si abbassa. L'energia media degli elettroni retrodiffusi si può calcolare conoscendo la distribuzione di energia; si è ricorso al modello di Niedrig [61] con cui è possibile ottenere analiticamente lo spettro e dunque si può ottenere un'energia media pari a:

$$E_b = k_b E_0 \quad (3.10)$$

Dove k_b si ottiene con una media integrale dello spettro. Sostituendo si ottiene:

$$E_0(1 - k_b \eta_b) = E_d \quad (3.11)$$

Da questa relazione si vede che l'energia media depositata nel sistema varia in funzione del coefficiente di *backscattering*: se esso aumenta, come nel caso di Tungsteno-Silicio,

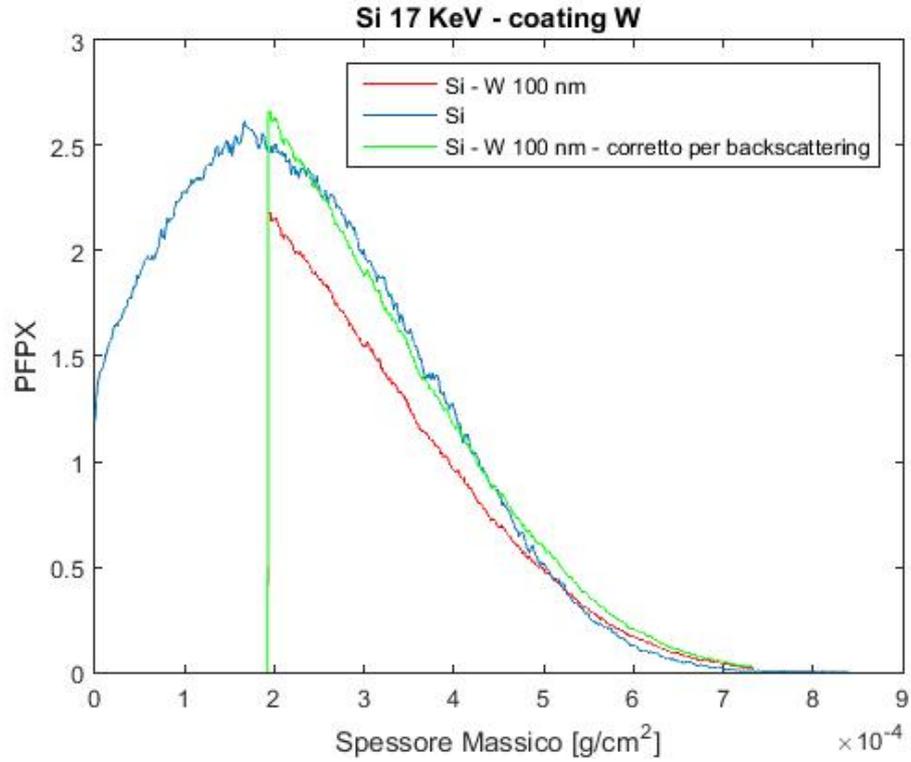


Figura 3.4: Sono mostrate PFPX, simulate con CASINO, di Silicio (in blu), di Silicio con un film di 100 nm di Tungsteno (in rosso); a quest'ultima è stato moltiplicato il fattore di *backscattering* (in verde). Le curve sono state ottenute con un potenziale di accelerazione di 17 kV.

l'energia depositata sarà inferiore. Per mettere in relazione i sistemi analizzati dalla EDXS (cioè solo substrato e multistrato) si ipotizza che il coefficiente k_b rimanga immutato (approssimazione ragionevole nel limite dell'errore dello spettro analitico di Niedrig [61]) e, poiché l'energia E_0 rimane la stessa, la relazione tra le energie depositate nei due sistemi dipende dai differenti coefficienti di *backscattering* e sarà quindi:

$$E'_0 = \frac{1 - k_b \eta'_0}{1 - k_b \eta_0} E_d^0 = f_{corr} E_d^0 \quad (3.12)$$

In prima approssimazione l'ampiezza della PFPX è proporzionale all'energia depositata e si può semplicemente applicare la correzione:

$$\phi'(\rho z) = f_{corr} \phi^0(\rho z) \quad (3.13)$$

Si è dunque ipotizzato che, nei confronti della produzione di raggi X per il substrato, il *coating* agisca come uno strato infinitesimo che altera il coefficiente di *backscattering* del

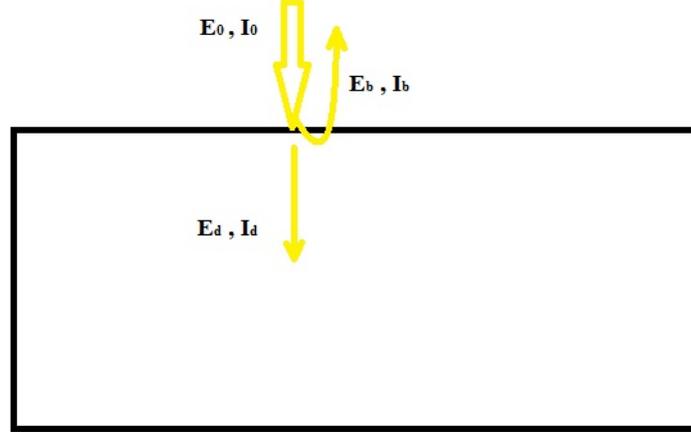


Figura 3.5: Schema del modello di correzione per *backscattering*; il fascio di elettroni del SEM incide sul substrato con un'energia $E_0[keV]$ e una fluensa $I_0[1/m^2sec]$, il fascio viene in parte trasmesso con un'energia media e una fluensa E_d e I_d e in parte retrodiffuso con E_b e I_b .

sistema; per ottenere tale coefficiente si è ricorso al modello di Niedrig [62]. Le formule necessarie per calcolare i coefficienti sono di seguito elencate:

$$\beta = 0.4 + 0.065 \log \left(\frac{E_0}{1.6 \cdot 10^{-16}} \right) \quad (3.14)$$

$$\eta_{bulk} = \beta(1 - \exp(-6.6 \cdot 10^{-3} \beta^{-5/2} Z)) \quad (3.15)$$

$$\eta_{film} = \frac{a(a+k-1)}{(a+k)(a+k+1)} \left[1 - \left(1 - 2 \frac{a+k}{(a+k-1)D/R(1-D/R)^{a+k}} \right) + k \frac{a+k-2}{(a+k)(a+k-1)} \left(1 - \left(1 - 2 \frac{a+k-1}{(a+k-2)D/R} \right) (1-D/R)^{a+k-1} \right) \right] \quad (3.16)$$

$$\eta_{tot} = \eta_{bulkS} + \eta_{film} \left(1 - \frac{\eta_{bulkS}}{\eta_{bulkF}} \right) \quad (3.17)$$

Dove E_0 è l'energia degli elettroni incidenti, Z il numero atomico, η_{bulkS} e η_{bulkF} il coefficiente di *backscattering* per un materiale sufficientemente spesso rispettivamente pari a quello del substrato e quello del film, η_{film} il coefficiente di *backscattering* del film senza substrato in funzione dello spessore D , η_{tot} il coefficiente di *backscattering* del sistema film-substrato.

Nel caso in cui il numero atomico del substrato sia maggiore di quello del film questo tipo di correzione porta a risultati errati, poiché non si può più trascurare la natura a più

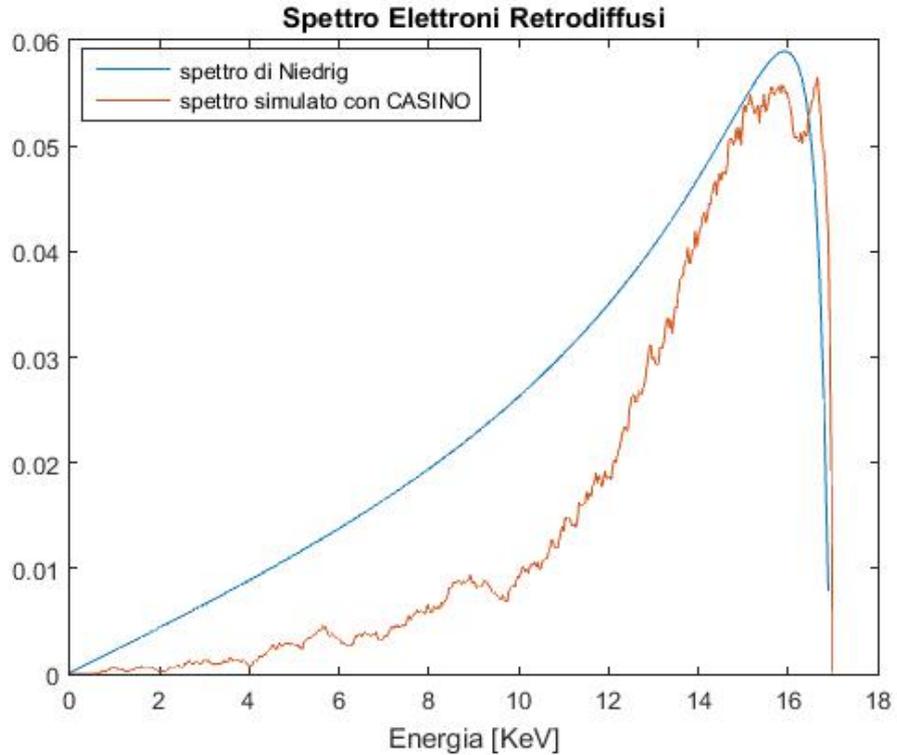


Figura 3.6: Spettro degli elettroni retrodiffusi, ottenuto con CASINO e con il modello di Niedrig [61], da un campione di Silicio, con un potenziale di accelerazione di 17 kV . L'accordo non è ottimo, tuttavia è sufficiente per ottenere un valore di k_b con un errore entro il 10%.

strati del sistema. Come si vede nell'esempio di figura 3.7 gli elettroni entrano nel primo strato con pochi eventi di *backscattering* e senza essere diffusi; successivamente entrano nel substrato e a quel punto iniziano a diffondere. Quello che si nota è che gli elettroni retrodiffusi dal substrato al *coating* vengono "persi" dal sistema, in quanto il film non è in grado di retrodiffondere a sua volta gli elettroni.

È stato dunque elaborato un nuovo fattore di correzione per questa tipologia di sistemi, basato sull'idea che un elettrone retrodiffuso dal substrato ha una probabilità inferiore di tornare di nuovo nel substrato e di depositare in esso energia (e dunque produrre raggi X).

Utilizzando le stesse ipotesi del caso precedente e seguendo lo schema di figura 3.8, vediamo che l'energia totale depositata nel substrato è la somma di diversi contributi, contrassegnati in figura con i numeri dall'uno al tre. Il primo si può esprimere come:

$$E_{s1} = E_0(1 - k_b\eta_F)(1 - k_b\eta_S) \quad (3.18)$$

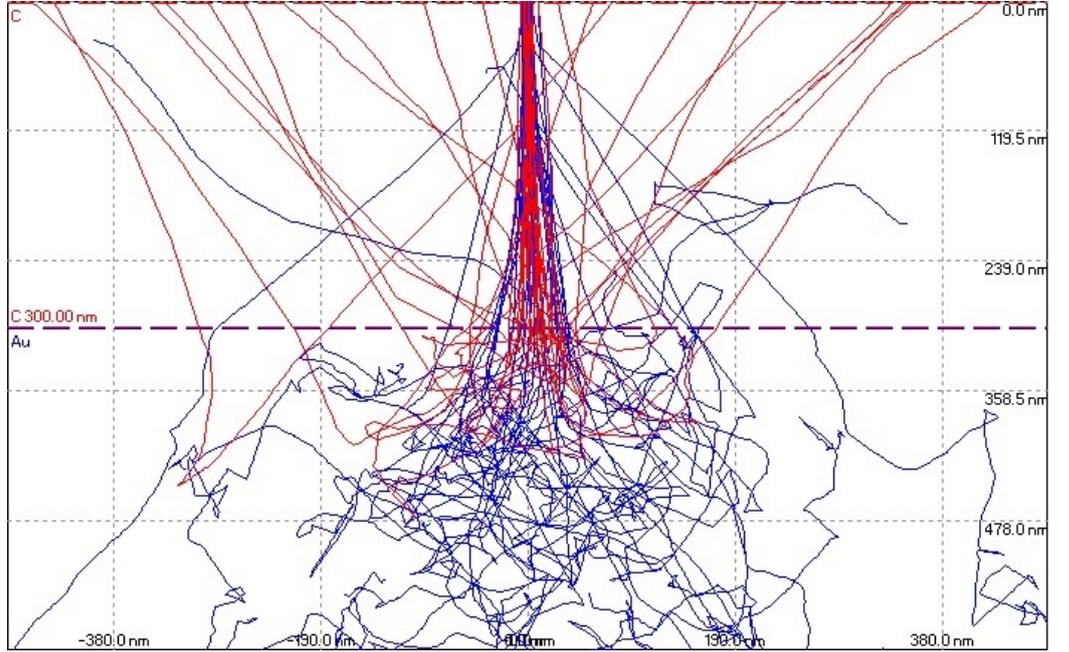


Figura 3.7: Simulazione di CASINO; sono mostrati i percorsi di elettroni accelerati a 17 kV all'interno di un sistema con un substrato di Oro e un *coating* di Carbonio di 300 nm con densità pari a quella della grafite (2.62 g/cm^3).

Cioè abbiamo due step successivi in cui l'energia diminuisce a causa del *backscattering* del film e del substrato; anche in questo caso si è fatta l'ulteriore ipotesi che k_b rimanga sempre uguale ad ogni *step*. In questo caso i coefficienti di *backscattering* sono quelli di film senza substrato (η_F) e substrato senza film (η_S). Il secondo contributo è dovuto a quegli elettroni che, retrodiffusi dal substrato, vengono retrodiffusi nuovamente dal film e depositano altra energia nel substrato:

$$E_{s2} = E_0(1 - k_b\eta_F)(k_b\eta_S)(k_b\eta_F)(1 - k_b\eta_S) = E_{s1}(k_b\eta_S)(k_b\eta_F) \quad (3.19)$$

E il terzo contributo è dovuto a un altro *step* e quindi:

$$E_{s3} = E_0(1 - k_b\eta_F)(k_b\eta_S)(k_b\eta_F)(k_b\eta_S)(k_b\eta_F)(1 - k_b\eta_S) = E_{s1}[(k_b\eta_S)(k_b\eta_F)]^2 \quad (3.20)$$

I contributi non sono solo tre poiché questo procedimento può procedere all'infinito, tuttavia si vede che i contributi procedono con una serie geometrica che converge a:

$$E_{stot} = \frac{E_{s1}}{1 - (k_b\eta_S)(k_b\eta_F)} = E_0 \frac{(1 - k_b\eta_F)(1 - k_b\eta_S)}{1 - (k_b\eta_S)(k_b\eta_F)} \quad (3.21)$$

Combinando con la relazione 3.11, del caso solo substrato, si ottiene dunque:

$$E_{stot} = E_d \frac{1 - k_b\eta_F}{1 - (k_b\eta_S)(k_b\eta_F)} \quad (3.22)$$

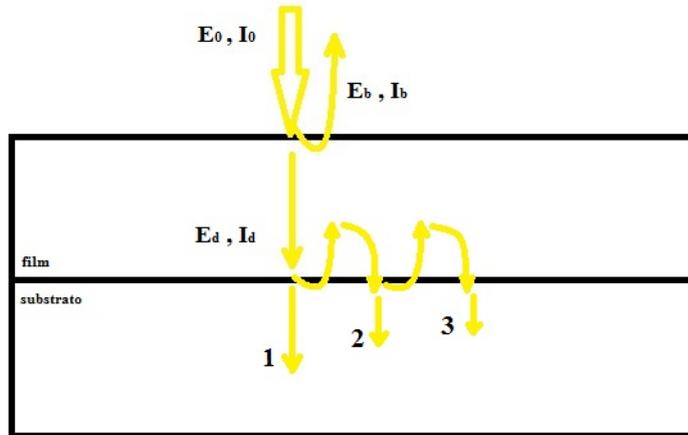


Figura 3.8: Schema del modello di correzione per *backscattering*; il fascio di elettroni del SEM incide sul film con energia pari a E_0 e fluenza I_0 , il fascio viene in parte trasmesso con energia E_d fino al substrato dove viene trasmesso con energia E_s ; tale energia è la somma di diversi contributi dovuti al fatto che gli elettroni vengono continuamente retrodiffusi tra il film e il substrato.

$$f_{corr} = \frac{1 - k_b \eta_F}{1 - (k_b \eta_S)(k_b \eta_F)} \quad (3.23)$$

Questi fattori di correzione sono validi solamente per il metodo del substrato, in quanto esso presenta in partenza un errore inferiore rispetto al metodo del *coating* (paragrafo 2.3.3), tuttavia queste considerazioni si possono estendere anche al metodo del *coating*.

3.2.3 Risoluzione dell'equazione del trasporto di elettroni

Come si è visto dai paragrafi precedenti, la tecnica di valutazione di densità di film sottili ha i suoi principali limiti nella bassa accuratezza della PFXP nella difficoltà di prevedere le distorsioni indotte in esse da bersagli multistrato ad alto ΔZ . Una possibile soluzione ad entrambi i limiti sta nella risoluzione dell'equazione del trasporto di Boltzmann applicata al trasporto di elettroni; nel semplificato sistema di campioni *monolayer*, con incidenza del fascio elettronico normale alla superficie, Brown [63] è riuscito a risolvere numericamente una versione semplificata dell'equazione, ottenendo diverse funzioni di interesse (come la distribuzione in energia e in angolo degli elettroni retrodiffusi), tra cui risulta di particolare importanza il calcolo di $\phi(\rho z)$. In questo lavoro di tesi è stato implementato il suo stesso modello (alle differenze finite), introducendo la possibilità di descrivere anche campioni multistrato.

Il modello si basa sulle assunzioni di H. A. Bethe [64], che per primo ha affrontato il problema dello *scattering* multiplo di elettroni:

- lo *scattering* degli elettroni incidenti avviene attraverso una serie di interazioni a 2 particelle, tra un elettrone e un atomo del campione.
- il numero di elettroni diffusi ad alto angolo è basso.
- l'energia degli elettroni è determinata univocamente dalla distanza che essi hanno percorso nel campione (in generale ciò non è vero in quanto il processo di trasporto di elettroni nella materia avviene con perdita di energia discontinua, urti; il problema viene risolto considerando solo una perdita di energia media e a posteriori si effettua una correzione)

Sotto queste assunzioni, a partire dall'equazione di Boltzmann, si ricava la seguente equazione (per la derivazione dell'equazione si veda H. A. Bethe [64]):

$$\frac{\partial}{\partial s} f(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) = -\mathbf{u} \cdot \nabla_{\mathbf{r}} f(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) + \frac{1}{\lambda(s)} \nabla_{\mathbf{u}}^2 f(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) \quad (3.24)$$

dove \mathbf{r} è il vettore posizione, \mathbf{u} il vettore unitario di direzione del moto, s la distanza percorsa lungo il cammino dell'elettrone, λ è il libero cammino medio di trasporto

$$\frac{1}{\lambda(s)} = \pi N \int \sigma(\alpha, s) (1 - \cos\alpha) \cdot \sin\alpha d\alpha \quad (3.25)$$

e $\nabla_{\mathbf{u}}^2$ è l'operatore

$$\frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} \left(\sin\theta \frac{\partial}{\partial\theta} \right) + \frac{1}{\sin^2\theta} \frac{\partial^2}{\partial\Phi^2} \quad (3.26)$$

dove α l'angolo tra \mathbf{u} (prima della collisione) e \mathbf{u}' (dopo la collisione), N il numero di centri di *scattering* per unità di volume, $\sigma(\alpha, s)$ è la sezione d'urto di elettroni che hanno percorso una distanza s e vengono deflessi di un angolo α , θ è l'angolo tra \mathbf{u} e la normale alla superficie del campione, Φ è la coordinata azimutale di \mathbf{u} . La funzione f rappresenta la distribuzione di elettroni nello spazio delle fasi: per ogni valore di s , $f(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) \sin\theta d\theta d\Phi d^3r$ è il numero di elettroni che hanno percorso una distanza s nel campione e che si trovano nell'elemento volumetrico d^3r intorno alla posizione \mathbf{r} , con direzione di moto \mathbf{u} che giace tra θ e $\theta + d\theta$, Φ e $\Phi + d\Phi$.

Nel caso in cui l'incidenza degli elettroni è normale, a causa della simmetria cilindrica del sistema fisico è possibile passare a una formulazione della relazione 3.24 rispetto una sola direzione spaziale (x) [63]:

$$\frac{\partial}{\partial s} [\sin\theta f(x, \theta, s)] = -\frac{\partial}{\partial x} [\cos\theta \sin\theta f(x, \theta, s)] + \frac{1}{\lambda(s)} \frac{\partial}{\partial\theta} \left[\left(\sin\theta \frac{\partial}{\partial\theta} \right) f(x, \theta, s) \right] \quad (3.27)$$

dove x è la variabile di profondità. L'equazione 3.27 è risolvibile numericamente, senza l'ausilio di *supercomputer*, con metodi convenzionali (come le differenze finite o gli elementi

finiti); le condizioni al contorno da adottare sono:

$$f(x, \theta, s) = 0, \text{ per } x = s_R \quad (3.28)$$

$$f(x, \theta, s) = \delta(x)\delta(\theta), \text{ per } s = 0 \quad (3.29)$$

$$f(x, \theta, s) = 0, \text{ per } s > 0 \text{ e } 0 \leq \theta < \pi/2 \quad (3.30)$$

dove s_R è il *range* degli elettroni incidenti sul campione. Per ottenere una soluzione accurata è necessario conoscere con precisione il libero cammino di trasporto $\lambda(s)$ che a sua volta dipende dalla sezione d'urto, per la quale si usa la versione di Rutherford con un termine di *damping* perchè non diverga a bassi angoli; si ricava quindi la relazione (valida per energie non relativistiche) [65]:

$$\frac{1}{\lambda(s)} = 9.8 \cdot 10^3 \frac{\rho}{V^2} \cdot c_i \frac{Z^2}{A} \ln \left(\frac{8.5V}{\nu^2 Z^{2/3}} \right) \quad (3.31)$$

dove ν è un parametro che si ottiene con la relazione $\nu = \nu'(Z/40)^{0.09}$, mentre V è l'energia di un elettrone che, nell'ipotesi di poter associare ad ogni valore di s un'energia, si può esprimere in funzione di s . Essa si ottiene nell'approssimazione di rallentamento continuo $s = \int_{V_0}^V (ds/dV)dV$, dove, secondo la relazione di Spencer e Fano [63], $ds/dV = (KM)^{-1}[1 - (\pi^2/6)M^{-2}]$, con $K = 3.94 \cdot 10^4(\rho Z/A)(1/V)$ e $M = 1 + \ln[4V(V_0 - V)/I^2] - \ln(V_0/V)$. In questa trattazione si è usata una relazione per la sezione d'urto parzialmente empirica e una descrizione non relativistica, tuttavia queste semplificazioni non inficiano i risultati ottenuti. Si rimanda a Brown [63] che hanno proposto diverse correzioni per tener conto di questi ed altri effetti.

Per risolvere numericamente l'equazione 3.27 è stato utilizzato lo schema alle differenze finite di Lax-Wendroff, di cui si può trovare una descrizione dettagliata nel libro di Quarteroni [66]. Con il quale si è ottenuta come soluzione la funzione distribuzione $f(x, \theta, s)$ in ogni punto della griglia $\theta \times x \times s$ suddivisa in intervalli $40 \times 80 \times 5000$, attraverso questo metodo si ricava una soluzione accurata in tempi di calcolo contenuti (decine di secondi con un *personal computer*).

In figura 3.9 è mostrata la soluzione $f(x, \theta, s)$ per diversi valori di s . Si osserva il trasporto dell'impulso di elettroni nella materia e la progressiva diffusione ad ampio angolo quando s aumenta e l'energia associata V diminuisce; ciò avviene perchè il libero cammino di trasporto diminuisce al diminuire dell'energia dell'elettrone (poichè la sezione d'urto aumenta) e quindi il termine di diffusione diventa sempre più influente. Infatti inizialmente gli elettroni energetici sono collimati e viaggiano nella materia con poche collisioni, mentre quando la loro energia diminuisce le collisioni diventano sempre più frequenti e il processo di diffusione diventa dominante.

Una volta nota la funzione di distribuzione è possibile ricavare le altre funzioni di interesse, nello specifico si ottiene la PFXP integrando la distribuzione per la sezione

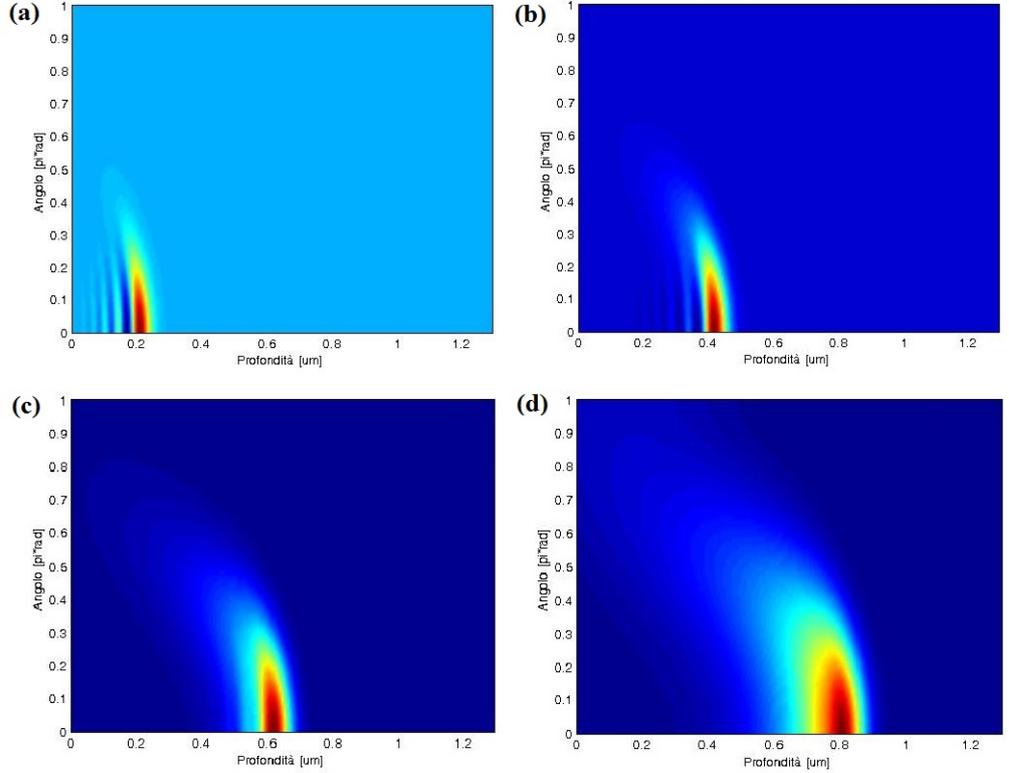


Figura 3.9: E' rappresentata la distribuzione $f(x, \theta, s)$ sul piano $x \times \theta$ per valori di distanza percorsa s crescenti: in (a) $s = 0.2s_R$, in (b) $s = 0.4s_R$, in (c) $s = 0.6s_R$, in (d) $s = 0.8s_R$. Nelle immagini in alto si osservano le oscillazioni smorzate tipiche dello schema Lax-Wendroff, che scompaiono quando la diffusione aumenta a causa dell'energia V inferiore

d'urto di produzione di fotoni, sull'angolo e la distanza percorsa.

$$\phi(\rho x) = \frac{WN}{\rho} \int_0^{\rho x} \left[\int_{-\pi}^{\pi} f(x, \theta, s) \sin \theta d\theta \right] Q_K(\rho s) d(\rho s) \quad (3.32)$$

dove W è la resa di fluorescenza e $Q_K = 7.92 \cdot 10^{-20} V_K^{-2} U^{-1} \ln U$ la sezione d'urto di produzione di raggi X (valida solo per la *shell* K), in cui V_K è l'energia d'eccitazione della transizione e $U = V/V_K$. In figura 3.10 sono mostrate le PFXP ottenute tramite questo modello e si verifica un migliore accordo, per energie tipiche di un SEM (5-30 keV), con la simulazione Montecarlo, presa come riferimento.

Inoltre l'equazione è stata risolta, per la prima volta in questo lavoro di tesi, per campioni multistrato. La figura 3.11 (b) mostra le $\phi(\rho z)$ ottenute per campioni composti da un substrato di Alluminio e un film di Carbonio di diverso spessore, con densità pari a quelle *bulk*; si osserva che il modello è in grado di descrivere le distorsioni nella PFXP

dovute a campioni multistrato, le quali diventano più marcate ad alto spessore di film (come è intuitivo pensare), nonostante il ΔZ tra substrato e *coating* non sia elevato (in questo caso pari a 7). Inoltre, confrontando figura 3.11 (a) e (b), si vede che i risultati del modello sono in perfetto accordo con quelli previsti dal codice Montecarlo.

Tuttavia quando il film ha numero atomico maggiore del substrato e la loro differenza di numero atomico e di densità assume grandi valori, il metodo numerico diventa instabile e risulta impossibile ricavare qualsiasi informazione dalla simulazione; per risolvere il problema in futuro si potrebbe implementare un metodo a elementi finiti (poichè permette di gestire più efficacemente le discontinuità) o aumentare l'ordine delle differenze finite sullo spazio x . Quando questi miglioramenti saranno introdotti nel modello, sarà possibile ottenere misure di spessore massico accurate, anche nel caso di campioni multistrato, con il seguente metodo: il codice verrà eseguito con un energia di elettroni fissata (pari a quella che desidera utilizzare per la misura), mentre verrà fatto variare lo spessore del film; le PFXP ottenute con i vari spessori di *coating* verranno utilizzate per calcolare il rapporto delle relazioni 2.3 (per il metodo del *coating*) o 2.4 (per il metodo del substrato), e a quel punto verrà rappresentata la funzione che esprime lo spessore massico in funzione del rapporto d'intensità, la cosiddetta curva di calibrazione. In questo modo saranno considerati anche gli effetti di distorsione della funzione $\phi(\rho z)$ dovuti al diverso numero atomico tra film e substrato, ottenendo dunque misure più precise.

3.3 Risultati

3.3.1 Validazione della tecnica con film di densità nota

I miglioramenti applicati alla tecnica di valutazione di densità di film sottili basata su EDXS sono stati validati attraverso la misura di film compatti con densità nota, misurata con QCM.

In primo luogo sono mostrati i risultati derivati dall'utilizzo di modelli alternativi per la PFXP. La figura 3.12 mostra la densità di un film di Argento, depositato su Oro, ottenuta con il metodo del substrato in funzione del voltaggio di accelerazione, utilizzando diversi modelli della PFXP, illustrati nei paragrafi 3.2.1 e 3.2.3; risultati che si ottengono variando modello sono molto più accurati, con un errore ridotto a circa il 5%. Lo stesso confronto viene fatto in figura 3.13, dove è mostrata la misura di densità in funzione del voltaggio di accelerazione, per un film di Tungsteno depositato su un substrato di Silicio; anche in questo caso si osserva una notevole riduzione dell'errore, anche se esso rimane intorno al 15%, poiché la differenza di numero atomico e densità tra film e substrato influenza la misura, introducendo perturbazioni in $\phi(\rho z)$.

I risultati mostrano inoltre una evidente dipendenza delle misure dal voltaggio di accelerazione, ad esempio in figura 3.12 si nota che le misure ottenute per i potenziali di

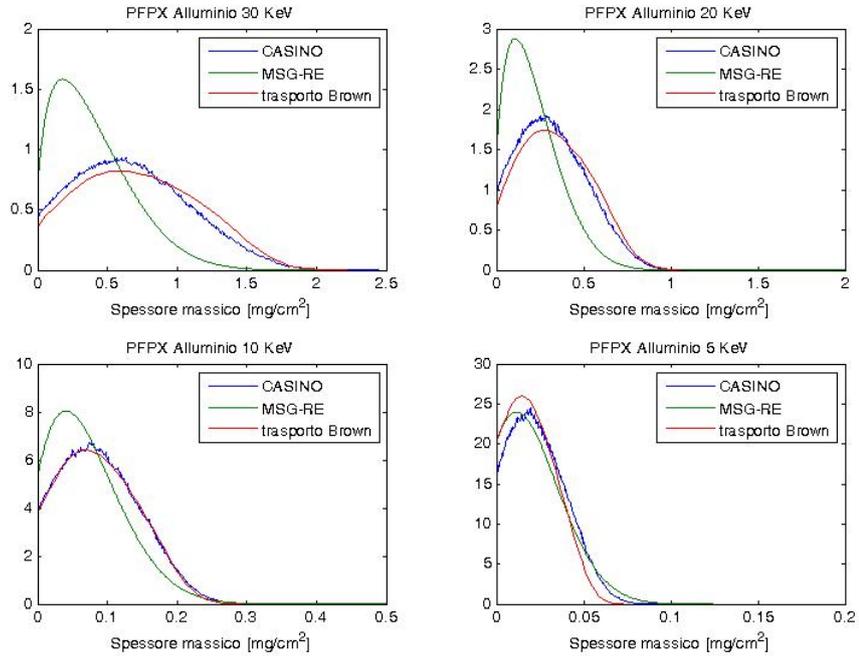


Figura 3.10: Sono mostrate le PFPX ottenute con tre differenti modelli: simulazione Montecarlo [59] (in blu), modello semiempirico MSG - metodo RE [53] (in verde), risoluzione dell'equazione del trasporto [63] (in blu). Si sono confrontati i modelli per l'elemento Al a diversi valori di energia di elettroni (5, 10, 20, 30 keV) e si osserva che per energie relativamente elevate (≥ 10 keV) il metodo semiempirico si discosta dalla simulazione Montecarlo, presa come riferimento per la sua affidabilità, mentre il modello di trasporto mantiene un buon accordo a tutte le energie.

10, 13 e 30 keV si discostano notevolmente dal dato della microbilancia, e anche l'utilizzo di PFPX più accurate non migliora molto il risultato. L'errore delle misure a 10 e 13 keV si spiega con il fatto che esse sono state ottenute con dei bassi valori di rapporto di intensità (inferiori a 0.2): poiché la derivata della curva di calibrazione diverge al di sotto di 0.2 (vedi figura 3.14), anche l'incertezza della misura diverge a sua volta a causa della propagazione dell'errore $\delta y = \frac{dy}{dx} \delta x$. Perciò per determinare con precisione la densità è necessario limitare inferiormente il rapporto d'intensità; come regola empirica si può considerare valida un misura effettuata con rapporto d'intensità superiore a 0.2. Per quanto riguarda il dato ottenuto a 30 keV bisogna, invece, considerare che a voltaggi di accelerazione crescenti gli elettroni supereranno il film subendo poche collisioni, producendo pochi raggi X e favorendo gli effetti dovuti al bordo (che non può essere a questo punto considerato perfettamente planare), diminuendo la validità della misura.

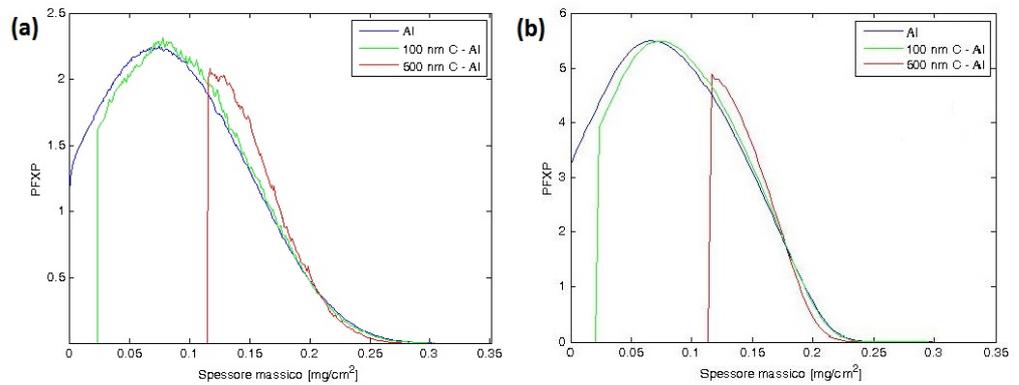


Figura 3.11: (Sono mostrate le PFXP di Alluminio ottenute con energia 10 keV, con diversi spessori di film di Carbonio di densità 2.3 g/cm^3 (100 nm in verde, 500 nm in rosso), calcolate con la simulazione Montecarlo (a) e il modello di trasporto (b). Gli assi delle ordinate sono in unità arbitrarie.

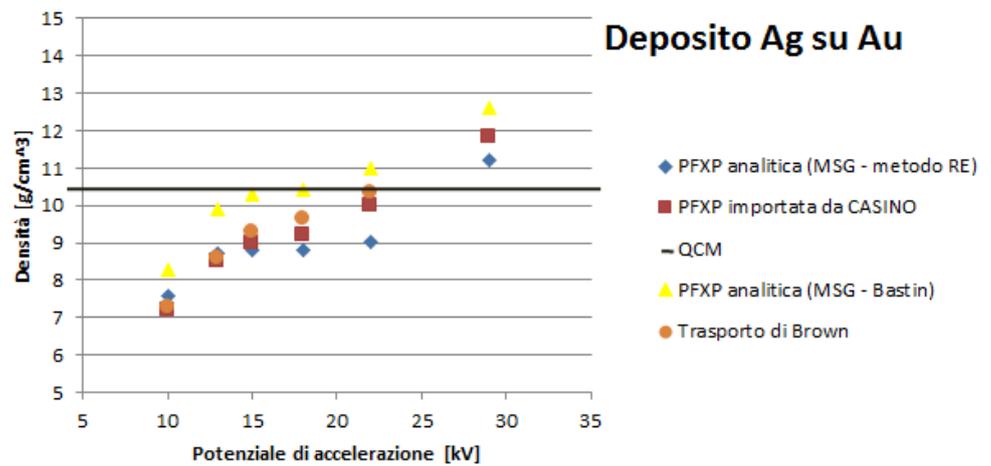


Figura 3.12: Viene mostrata la densità di un deposito di Argento su Oro ottenuta con la microbilancia e con la tecnica basata su EDXS con diversi modelli per la PFXP in funzione del voltaggio di accelerazione: modello MSG, metodo RE (in blu), modello MSG, parametri di Bastin (in giallo), simulazione Montecarlo (in rosso), modello di trasporto (in arancione).

Per effettuare misure con accuratezza elevata è dunque fondamentale determinare la tensione di accelerazione più adeguata; un modo per trovare questo valore è calcolare la densità con diverse energie del fascio di elettroni, rappresentare i dati in un grafico densità-voltaggio, come quelli raffigurati nelle figure 3.12 e 3.13, e infine osservare il *range*

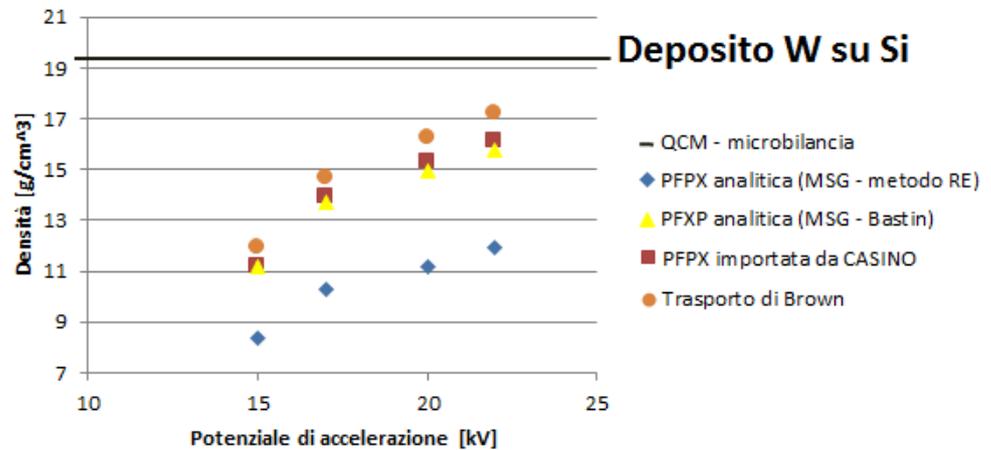


Figura 3.13: Viene mostrata la densità di un deposito di Tungsteno su Silicio ottenuta con la microbilancia e con la tecnica basata su EDXS con diversi modelli per la PFPX in funzione del voltaggio di accelerazione: modello MSG, metodo RE (in blu), modello MSG, parametri di Bastin (in giallo), simulazione Montecarlo (in rosso), modello di trasporto (in arancione).

di tensione per cui la misura non cambia (*plateau*). Tuttavia questo metodo impiega un tempo elevato, in quanto sono necessarie diverse misurazioni; per cui viene proposto un altro metodo, di tipo empirico, più rapido. Esso consiste nel simulare, con CASINO o con il modello di trasporto, il campione in analisi, utilizzando per la densità un valore stimato a priori; la simulazione viene ripetuta aumentando i valori di voltaggio, osservando di volta in volta la forma di $\phi(\rho z)$, che a maggior energia si estende a maggior profondità. Quando l'interfaccia coating-substrato si trova a metà dell'estensione della PFPX, viene preso come voltaggio ottimale il valore di tensione di accelerazione corrispondente. Questo criterio può essere applicato al sistema di figura 3.12, composto da un film di 300 nm di Argento depositato su Oro; in questo specifico caso si ottiene un voltaggio di circa 20 kV (vedi figura 3.15), il che è consistente con quanto si osserva in figura 3.12: il *plateau* di densità si trova infatti tra 15 e 25 kV di tensione di accelerazione.

Infine in alcuni casi la misura risulta ulteriormente migliorata dall'applicazione del modello correttivo per campioni multistrato, illustrato nel paragrafo 3.2.2: quando la differenza di numero atomico e densità tra substrato e *coating* è così alta da indurre forti distorsioni nella PFPX, allora è utile introdurre il fattore espresso nelle relazioni 3.12 e 3.23. Ne è un esempio il campione di figura 3.4, composto da un film di 100 nm di Tungsteno e da un substrato di Silicio; il *coating*, di altro numero atomico ($Z=74$) distorce il trasporto elettronico e la produzione di raggi X all'interno del substrato, di basso numero atomico ($Z=14$). In figura 3.16 viene dimostrata l'efficacia di questo modello nel migliorare le

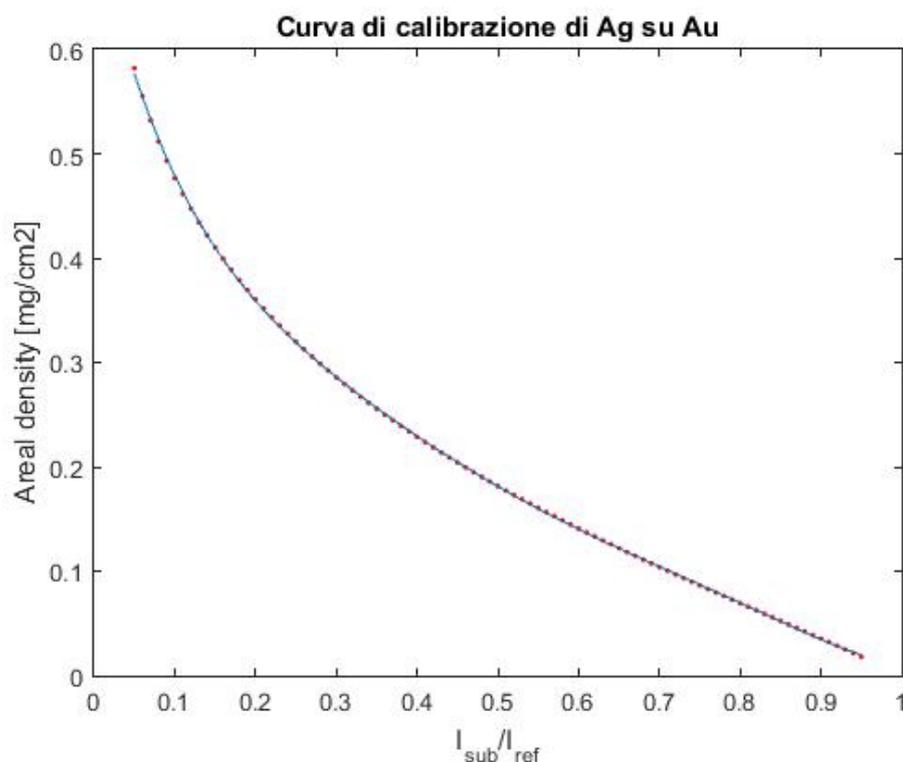


Figura 3.14: E' mostrata la curva di calibrazione, cioè la funzione che lega il rapporto di intensità allo spessore massico, per un dato sistema e un dato potenziale di accelerazione; in questo caso il sistema è dato da un film di argento su un substrato di oro, con un potenziale pari a 17 kV .

misure: in questo caso permette di abbassare l'errore entro il 10%. L'effetto del modello si può anche osservare da figura 3.4 e 3.15, dove la funzione $\phi(\rho z)$ del sistema multistrato, una volta moltiplicata per il fattore correttivo, corrisponde meglio alla $\phi(\rho z)$ relativa al Silicio.

3.3.2 Applicazione a bersagli multistrato con schiume di Carbonio

La tecnica di valutazione di densità basata su EDXS, con i miglioramenti descritti nella sezione 3.2, è stata applicata alla misurazione di densità di schiume di Carbonio, per le applicazioni di accelerazione di ioni mediante impulsi laser superintensi. La densità di questi film risulta infatti essere un parametro fondamentale nel processo di accelerazione, come descritto nel paragrafo 1.4.4.

I campioni misurati sono composti da un substrato di Silicio o Alluminio e un *coating* di Carbonio nanostrutturato a bassa densità, la cui morfologia è illustrata nei paragrafi

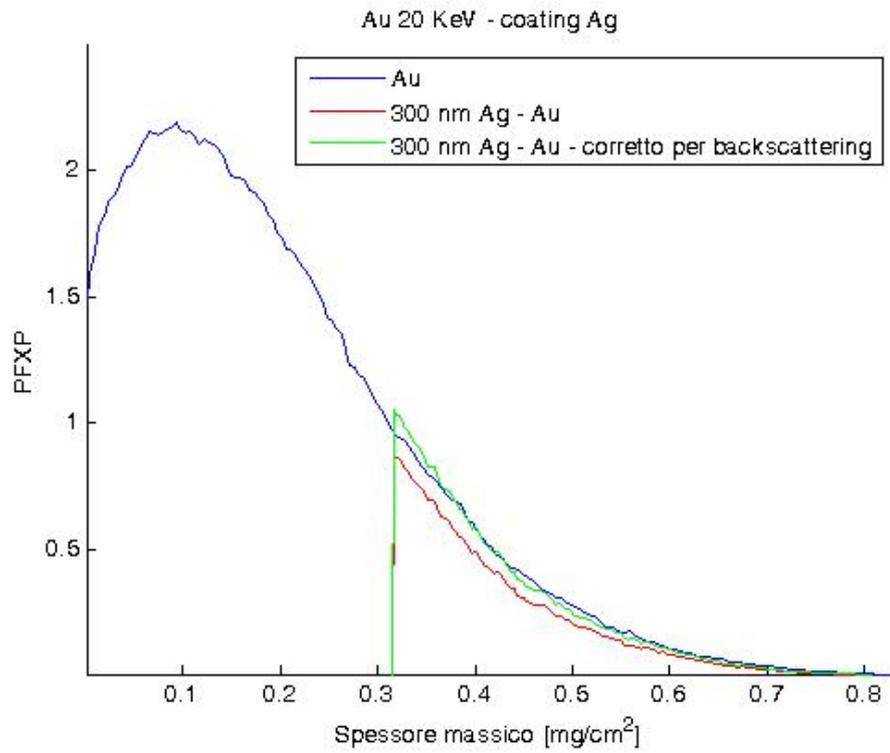


Figura 3.15: Sono mostrate PFXP, simulate con CASINO, di Oro (in blu), di Oro con un film di 300 nm di Argento (in rosso); a quest'ultima è stato moltiplicato il fattore di *backscattering* (in verde). Le curve sono state ottenute con un potenziale di accelerazione di 20 kV.

2.2.3 e 2.3.3. La densità delle schiume deve essere, per gli scopi degli esperimenti di accelerazione, confrontabile con la densità critica, che è pari a 5.7 mg/cm^3 , e quindi il relativo spessore massico è molto basso. Ad esempio una schiuma con densità pari a 10 mg/cm^3 e spessore $10 \text{ }\mu\text{m}$ possiede uno spessore massico di 10^{-5} g/cm^2 , equivalente a un film di Carbonio di 40 nm con densità pari a quella della grafite (2.6 g/cm^3). Risulta di conseguenza necessario usare potenziali di accelerazioni bassi ($< 10 \text{ keV}$), in quanto lo spessore del film è troppo sottile per essere analizzato da un fascio elettronico energetico. In particolare sono state usate tensioni tra i 3 e 9 kV.

Per studiare le condizioni migliori per misurare questi campioni sono stati simulati, con il modello di trasporto, i sistemi composti da un substrato di Silicio e un film di spessore variabile di schiume. La figura 3.17 mostra le PFXP, calcolate con il modello di trasporto, ottenute con 3 e 5 kV di potenziale di accelerazione; si osserva che, al fine di caratterizzare schiume sottili (intorno ai $2 - 3 \text{ }\mu\text{m}$), 5 kV rappresenta il limite superiore di tensione utilizzabile, in quanto per energie superiori il film diventa invisibile al fascio,

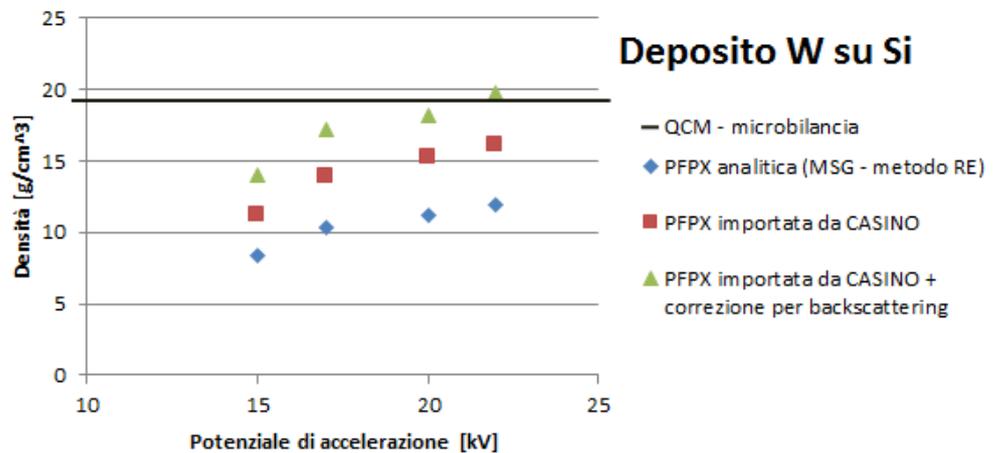


Figura 3.16: Viene mostrata la densità di un deposito di Tungsteno su Silicio ottenuta con la microbilancia e con la tecnica basata su EDXS con diversi modelli per la PFXP in funzione del voltaggio di accelerazione: modello MSG, metodo RE (in blu), simulazione Montecarlo (in rosso), simulazione Montecarlo a cui viene applicata la correzione per *backscattering* (in verde).

mentre per caratterizzare schiume più spesse (intorno ai $10 \mu m$) si può utilizzare un valore maggiore di voltaggio, fino a $10 kV$.

Al fine di determinare con precisione le densità dei film, si usa il codice Montecarlo per ottenere PFXP accurate, utilizzando la procedura illustrata nel paragrafo 3.2.1. Mentre non è necessario adottare il modello correttivo per campioni multistrato, infatti, come si vede da figura 3.17, le distorsioni della PFXP, indotte dal diverso numero atomico del *coating*, sono sufficientemente basse da essere ignorate.

Si sono quindi analizzate le densità di 3 diversi campioni di schiume di diverso spessore ($2.5 \mu m$, $7 \mu m$ e $12 \mu m$) realizzati con PLD (paragrafo 2.2.3) presso il NanoLab; la produzione di questi campioni è avvenuta nelle medesime condizioni di deposizione usate per produrre i bersagli multistrato irraggiati negli esperimenti precedenti, per cui ci si attende che le schiume così prodotte siano rappresentative di tali film. Si sono dunque effettuate misure con voltaggio pari a 3, 5 e 9 kV, ottenendo risultati riassunti nella tabella 3.1. E' immediato notare che i dati calcolati usando il modello MSG, portano a risultati che variano con il potenziale di accelerazione, mentre usando la $\phi(\rho z)$ ottenuta dalla simulazione Montecarlo le misure risultano consistenti tra di loro.

Il valor medio della densità così misurata risulta essere differente da quello calcolato negli esperimenti precedenti, infatti con le tecniche migliorative esso è pari a $11.1 mg/cm^3$ ($1.95 n_c$), con un errore relativo inferiore al 5%, da confrontare con le precedenti misurazioni, $6.8 mg/cm^2$ ($1.2 n_c$), con il 20% di errore. Alla luce della maggiore accuratezza

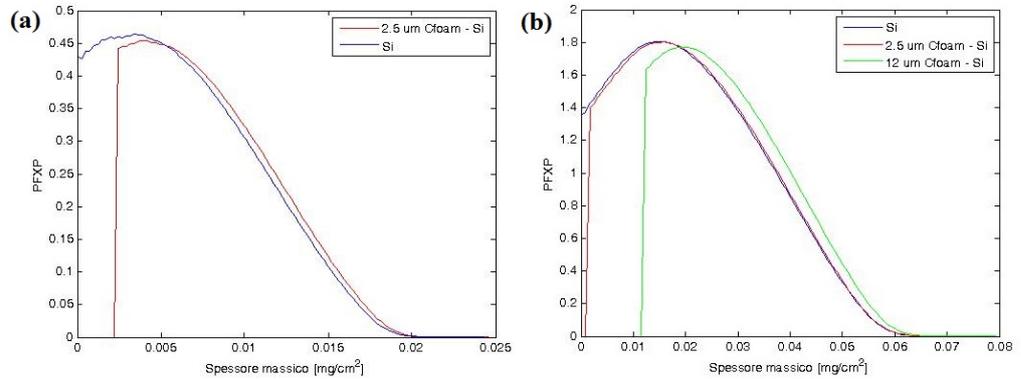


Figura 3.17: Sono mostrate PFXP, simulate con il modello di trasporto, di Silicio (in blu), di Silicio con un film di $2.5 \mu m$ (in rosso) e $12 \mu m$ (in verde) di schiuma di Carbonio con densità $10 mg/cm^3$ (in rosso); le curve sono state ottenute con un potenziale di accelerazione di $3 kV$ (a) e $5 kV$ (b).

Campione	Spessore campione [μm]	Potenziale di accelerazione [kV]	Rapporto di intensità I_S/I_S^{ref}	Densità MSG - RE [mg/cm^3]	Densità CASINO [mg/cm^3]	n/n_c
C265	2.5	5	0.95	9.2	11.2	1.96
		3	0.8	13.2	10.8	1.89
C273	12	5	0.7	9.4	10.9	1.91
C277	7	9	0.98	4.7	11.5	2.02
Valore Medio					11.1	1.95

Tabella 3.1: Misure di campioni multistrato con *coating* di schiume di Carbonio a bassa densità e substrato di Silicio. La densità critica è indicata con n_c ed è pari a $5.7 mg/cm^3$.

della tecnica che integra i miglioramenti descritti in questo capitolo, si considera il dato ottenuto in questo lavoro di tesi più affidabile.

In conclusione l'utilizzo di PFXP, calcolate con il codice Montecarlo, permette di caratterizzare con un'alta accuratezza tali campioni nanostrutturati, anche in diverse condizioni di misura (diversi potenziali di accelerazione): con questo metodo vengono dunque analizzati i bersagli descritti nel prossimo capitolo. Infine è importante sottolineare che la densità misurata nei precedenti esperimenti è sottostimata e perciò le precedenti analisi dovranno essere considerate alla luce di questo nuovo dato.

Capitolo 4

Esperimenti di accelerazione di ioni con bersagli multistrato con schiume di Carbonio

4.1 Obiettivi degli esperimenti

In questo capitolo vengono presentate le attività da me svolte per sviluppare la realizzazione di esperimenti di accelerazione di ioni, avvenuti nel 2015 in Corea del Sud, mediante interazione di impulsi laser ultrabrevi e superintensi con bersagli innovativi, composti da un sottile substrato e un film nanostrutturato di Carbonio con densità vicino a quella critica (pari a 5.7 mg/cm^3).

Gli obiettivi di questa campagna sperimentale sono stati indagare ulteriormente il processo di accelerazione in campioni multistrato che, come presentato nel paragrafo 1.4.4, hanno dimostrato di poter aumentare considerevolmente l'energia massima degli ioni in identiche condizioni sperimentali. I risultati della precedente campagna sperimentale hanno evidenziato l'interesse nell'indagare ulteriormente i seguenti aspetti:

- **Spessore della schiuma:** è stato osservato un forte aumento dell'energia massima degli ioni al diminuire dello spessore dei film, che erano stati prodotti con spessori da 8 a 36 μm . Si è dunque voluto studiare l'effetto della schiuma anche a spessori inferiori a 8 μm , in modo da trovare il punto che massimizza l'energia massima. Per quanto riguarda la densità delle schiume essa è stata mantenuta vicina alla densità critica per la grande maggioranza dei campioni, a parte pochi campioni realizzati con densità differente, pari a circa $30n_c$.

- **Spessore del substrato:** è stato osservato lo spessore del substrato (pari a 0.75 e 1.5 μm nella precedente campagna) non influiva molto sull'energia massima degli ioni. Poichè a spessori del substrato crescenti è associata una maggiore resistenza dei campioni, fondamentale in future applicazioni pratiche, è stato indagato il meccanismo di accelerazione in funzione di questa variabile, spaziando da spessori molto piccoli, da 20 nm , a più elevati, fino a 12 μm .
- **Angolo di incidenza e polarizzazione:** nei precedenti esperimenti è stato evidenziato che, ad angolo di incidenza di 30° , l'energia massima non dipendeva dal tipo di polarizzazione incidente. In questa campagna si è cambiato anche l'angolo di incidenza per osservare le differenze nelle diverse condizioni; in particolare sono state usate due condizioni, incidenza a 30° con polarizzazione P (condizione che favorisce il meccanismo TNSA con bersagli convenzionali) e incidenza quasi-normale (2.5°) e polarizzazione C (condizione più sfavorevole per bersagli convenzionali).

La fabbricazione di bersagli multistrato, che viene descritta nel paragrafo 4.2, è stata realizzata tramite deposizione a laser pulsato (PLD, capitolo 2) al NanoLab, al Politecnico di Milano; mentre l'irraggiamento dei campioni è stato effettuato nella *facility laser* del CoReLS, in Corea del Sud (paragrafo 4.3), ed ha portato a risultati, analizzati tramite l'apparato di diagnostica di ioni energetici illustrato nel paragrafo 4.4, che sono commentati nel paragrafo 4.5.

4.2 Produzione e caratterizzazione di bersagli multistrato con schiume di Carbonio

Bersagli multistrato con film di Carbonio nanostrutturato, di densità richiesta dagli obiettivi degli esperimenti, sono stati prodotti e caratterizzati grazie alle tecniche illustrate nei capitoli 2 e 3. I campioni sono stati realizzati con diversi spessori di schiume, pari a 3, 5, 8, 10, 12 μm , e diverse composizioni e spessori di substrato, pari a 0.75, 1.5, 2.4, 6.5, 7, 12 μm di Alluminio, 6 μm di Rame e 20 nm di materiale polimerico. I risultati della produzione di questi campioni sono riassunti nella tabella 4.2.

Per fabbricare le schiume è stata usata l'apparato PLD descritto nel paragrafo 2.2.2, con tre *set* di parametri per produrre i campioni con le caratteristiche richieste, mentre per misurare la densità si è utilizzata la tecnica basata su EDXS, descritta specificatamente per schiume di Carbonio nel paragrafo 3.3.2. In particolare, i parametri di processo scelti per la produzione delle diverse tipologie di campioni sono stati i seguenti:

1. spessore 3-5 μm , densità $\sim 2n_c$: è stata usata un'energia media del laser pari a 152 mJ , mentre è stato usato Argon come gas in camera, alla pressione di 700 Pa . La

Substrato		Film	
Materiale	Spessore [μm]	Densità	Spessore [μm]
Al	0.75	$\sim 2n_c$	0
			3
			5
			8
			10
			12
			7
Al	1.5	$\sim 2n_c$	0
			3
			5
			8
			10
			12
Al	2.4	$\sim 2n_c$	0
			3
			5
			8
			10
			12
Al	6.5	$\sim 2n_c$	0
			8
Cu	7	$\sim 2n_c$	0
			8
Al	12	$\sim 2n_c$	0
			8
Polymer	20 nm	$\sim 2n_c$	0
			8
			12
			32
			64

Tabella 4.1: Lista dei campioni fabbricati al NanoLab e irraggiati al CoReLS nel 2015

distanza *target*-substrato è stata fissata a 8.5 cm ed è stata mantenuta costante in tutti i 3 regimi di deposizione. Queste condizioni hanno permesso la realizzazione di film con una buona copertura per spessori inferiori a 8 μm , risultato che non era stato ottenuto nelle campagne sperimentali precedenti (vedi figura 4.1).

- spessore 8-64 μm , densità $\sim 2n_c$: l'energia media utilizzata è 127 mJ ed è stato usato Argon a 500 Pa. In queste condizioni si sono fabbricate schiume con una buona copertura del substrato per tutti gli spessori; inoltre le caratteristiche sono simili al regime di deposizione del punto precedente e ci si aspetta di conseguenza la stessa densità (vedi figura 4.2).
- spessore 7 μm , densità $\sim 30n_c$: l'energia media è stata imposta a 150 mJ mentre la pressione di Argon a 50 Pa, a questa pressione la "piuma" era poco confinata e quindi le specie, più energetiche, hanno dato luogo a un film più compatto, con una morfologia del tipo "cavolfiore" (vedi figura 4.3).

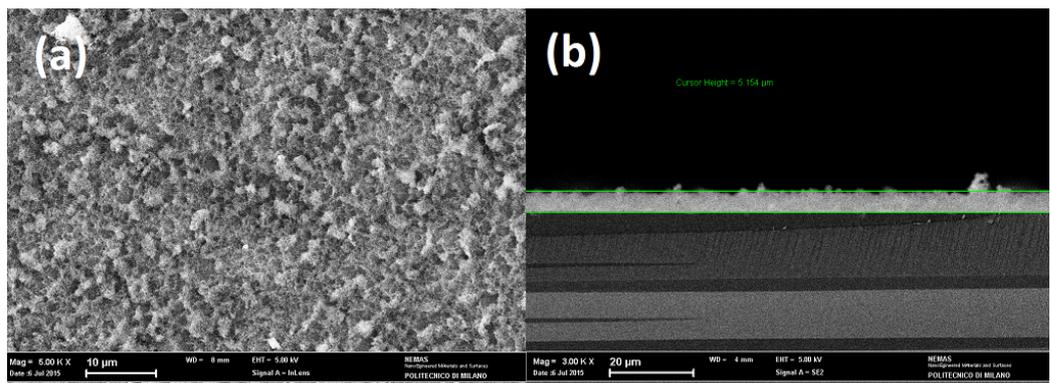


Figura 4.1: Immagini SEM con vista frontale (a) e vista laterale (b) di un campione con substrato di Si e film di schiuma di C, con densità $\sim 2n_c$; ottenuto tramite PLD con i seguenti parametri: energia del laser 150 mJ, pressione di gas in camera (Ar) 700 Pa, distanza *target*-substrato 8.5 cm.

In queste diverse condizioni, e con diversi tempi di deposizione, sono stati inizialmente prodotti campioni con substrato di Silicio e film di schiuma di Carbonio, dei quali si è misurato lo spessore tramite SEM con vista laterale; in questo modo è stato possibile ottenere una relazione tra spessore di *coating* e tempo di deposizione. I risultati, mostrati in figura 4.4, hanno dimostrato che il film cresce con un tasso costante e mantiene le sue proprietà di densità e morfologia al variare dello spessore, è stato anche visto che i regimi di deposizione 1 e 2 hanno rette di deposizione simili.

Una volta determinato il tempo di deposizione per i diversi spessori di *foam* desiderati, sono stati cresciuti i film sopra i differenti substrati specificati precedentemente. Essi, in

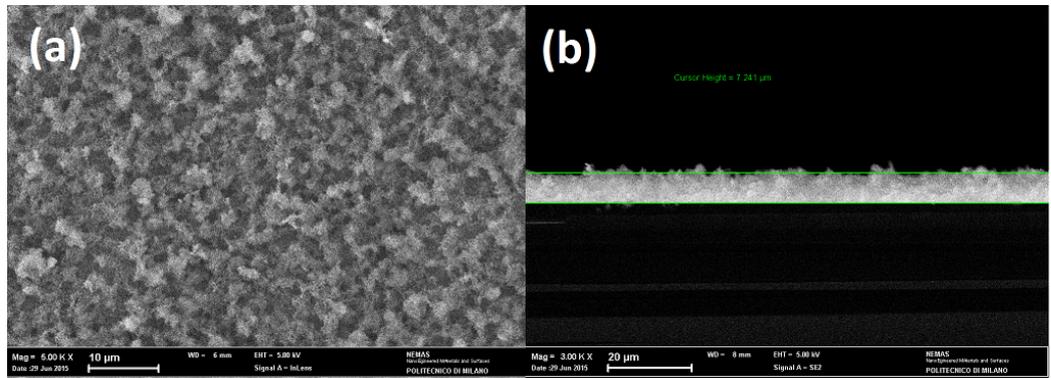


Figura 4.2: Immagini SEM con vista frontale (a) e vista laterale (b) di un campione con substrato di Si e film di schiuma di C, con densità $\sim 2n_c$; ottenuto tramite PLD con i seguenti parametri: energia del laser 125 mJ, pressione di gas in camera (Ar) 500 Pa, distanza *target*-substrato 8.5 cm.

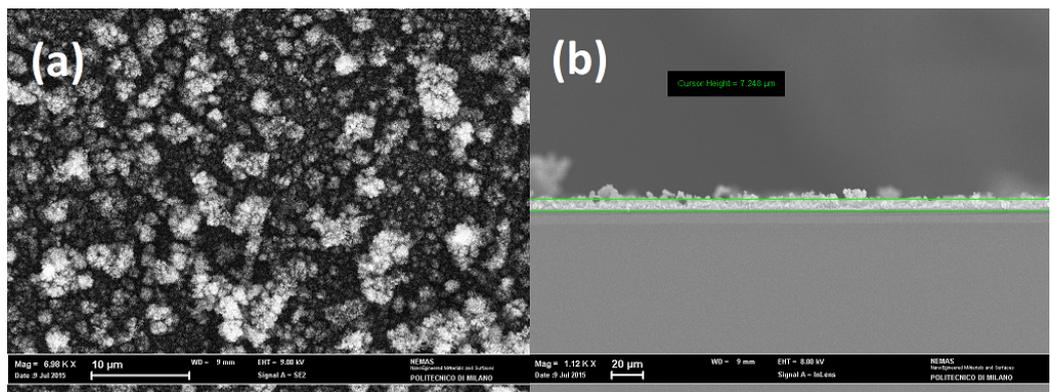


Figura 4.3: Immagini SEM con vista frontale (a) e vista laterale (b) di un campione con substrato di Si e film di schiuma di C, con densità $\sim 2n_c$; ottenuto tramite PLD con i seguenti parametri: energia del laser 150 mJ, pressione di gas in camera (Ar) 50 Pa, distanza *target*-substrato 8.5 cm.

quanto molto sottili (da 20 nm a 12 μm), sono stati incollati ad appositi sostegni (*target holder*) che permettessero un facile posizionamento al momento dell'irraggiamento laser. Come si vede in figura 4.5, sono stati realizzati due tipi di *holder* che presentano due diverse configurazioni: il sostegno mostrato in (a) presenta una densità di fori più bassa di quello mostrato in (b) e perciò possiede il vantaggio di diminuire gli sforzi di *shock* causati dall'impulso nei fori circostanti, con lo svantaggio però di poter un numero inferiore di campioni prima di cambiare il supporto, mostrato in figura 4.6 (a).

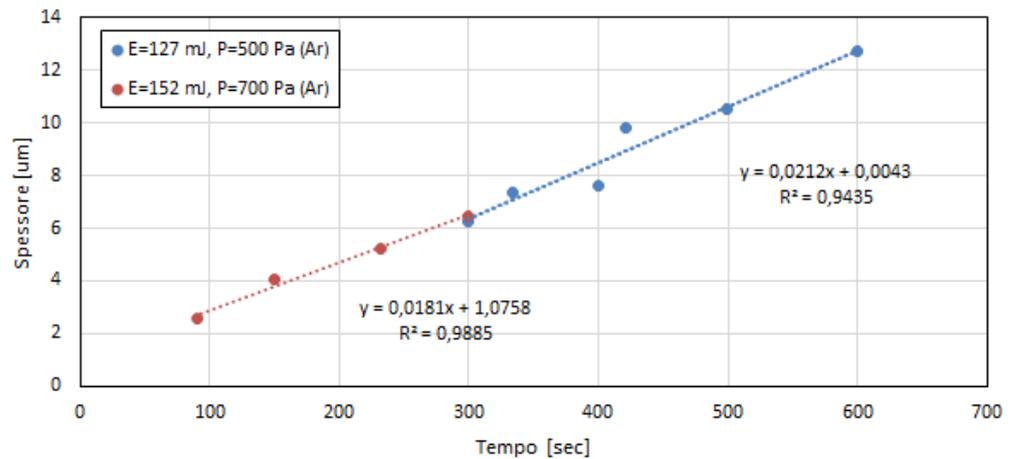


Figura 4.4: Regressione lineare tra spessore del film del campione e tempo di deposizione.

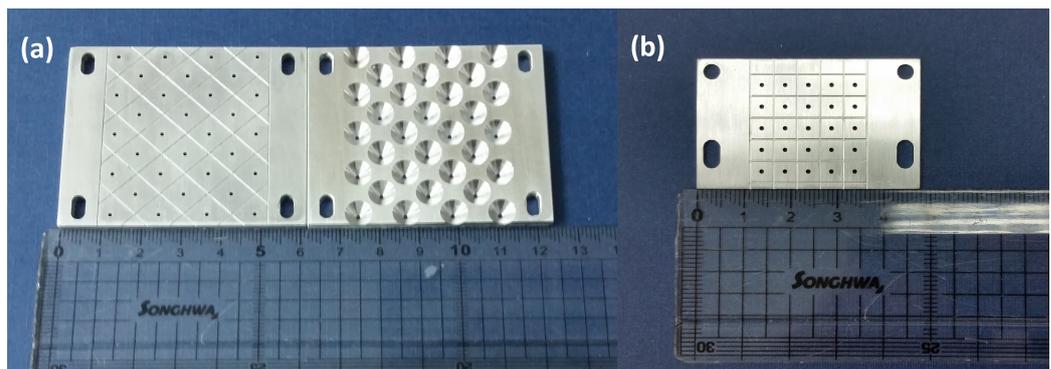


Figura 4.5: *target holder* usati negli esperimenti del 2015; in (a) e (b) sono mostrati i due diversi tipi di *target holder*, con le relative dimensioni.

4.3 *Setup* sperimentale CoReLS

I bersagli multistrato con schiume di Carbonio prodotti al NanoLab sono stati irraggiati al *Centre of Relativistic Laser Science* (CoReLS) in Corea del Sud. Questa *facility laser* permette la generazione di impulsi ultrabrevi (33 *fs*) e superintensi grazie alla CPA di un oscillatore a Ti:sapphire con lunghezza d'onda centrale di $\lambda = 805 \text{ nm}$ (vedi figura 4.7). Rispetto al 2014 l'intensità massima è stata aumentata grazie all'aggiunta di un ulteriore *stage* di amplificazione, passando da $4 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$ a $7 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$. L'energia massima dell'impulso prima del *pulse compressor* raggiunge 44 *J*; esso viene compresso e focalizzato con uno specchio parabolico a $f/3$ su un *focal spot* con diametro di $\sim 5 \mu\text{m}$ e ne viene aumentato il rapporto di contrasto tramite due *Plasma Mirror* in successione. L'energia

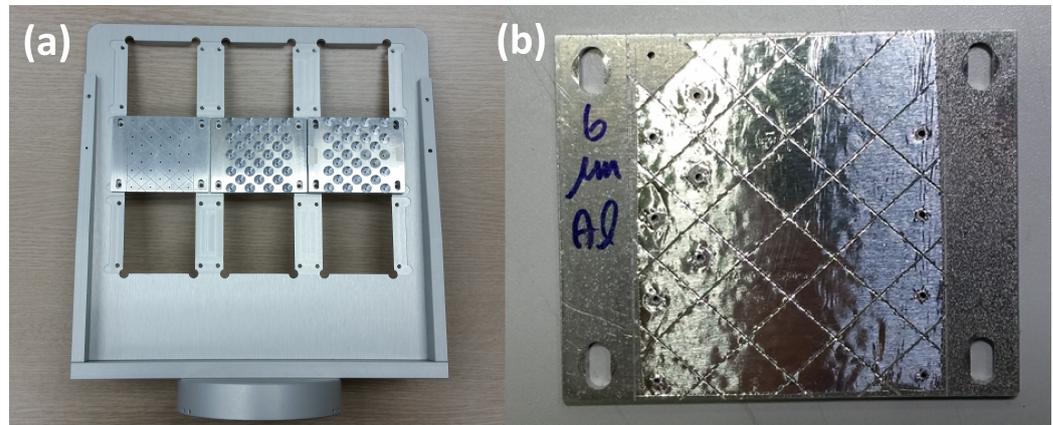


Figura 4.6: (a) supporto dei *target holder* che viene montato nella camera a vuoto. (b) Esempio di campione irraggiato.

massima di impulso sul *target* è pari a $10 J$ e può essere ridotta, modificando il numero di *stage* di amplificazione, per effettuare esperimenti con una diversa intensità. Il sistema laser genera impulsi in polarizzazione lineare S (campo elettrico dell'onda parallelo al piano di incidenza) e attraverso lamine a $\lambda/2$ e $\lambda/4$ si possono ottenere anche la polarizzazione lineare P (campo elettrico perpendicolare al piano di incidenza) e circolare C, con fattori di trasmissione di energia rispettivamente di 0.83 e 0.87. L'interazione tra impulso e bersaglio avviene in una camera a vuoto, mostrata in figura 4.7 (b) e schematizzata in 4.8; l'angolo di incidenza può essere variato andando a cambiare l'angolo di posizionamento del bersaglio, spaziando da 30° a 2.5° (incidenza quasi-normale).

L'interazione dell'impulso laser superintenso e ultrabreve, come introdotto nel capitolo 1, produce ioni accelerati; per poter analizzare e comprendere il fenomeno è necessario determinare le proprietà degli ioni grazie a un sistema di diagnostica. Come si osserva in figura 4.8, nella camera di interazione sono installati 4 spettrometri a Parabola Thomson che permettono di misurare lo spettro energetico degli ioni in diversi punti della camera. Come descritto nel paragrafo 2.4.2, lo spettrometro deflette le particelle grazie a campi magnetostatici ed elettrostatici e genera tracce paraboliche che vengono raccolte da un rivelatore, in questo caso un MCP; la configurazione dei 4 spettrometri è simile a quella del TPS2 usata negli esperimenti del 2014, mostrata in figura 4.9, con differenti valori dei parametri geometrici e di campi.

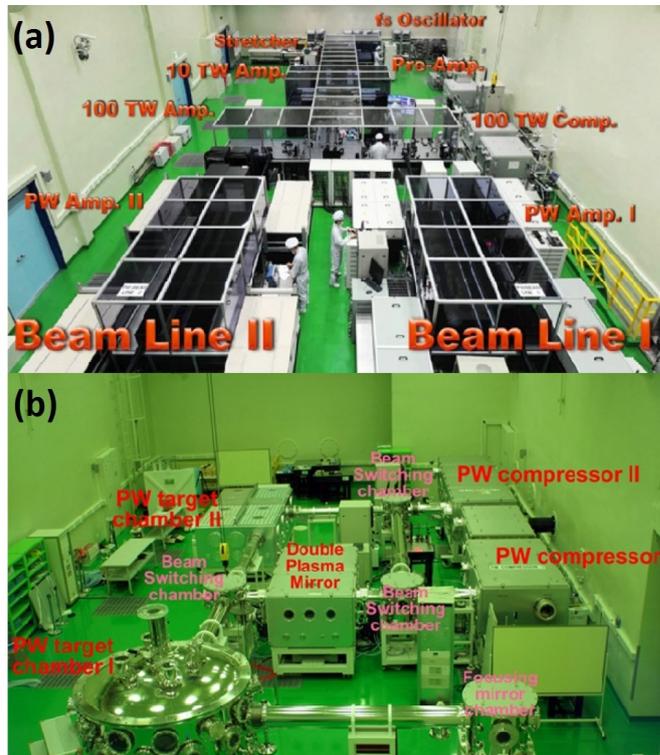


Figura 4.7: è mostrata in (a) l'area sperimentale del CoReLS con le linee del fascio laser e in (b) l'area sperimentale della camera d'interazione.

4.4 Elaborazione dei dati di spettrometri a Parabola Thomson

L'elaborazione delle tracce è stata effettuata, negli anni precedenti, con un *software* coreano (*Thomson parabola spectrometer Image Analyzer for Radiation Research and Application*, TIARRA), il cui funzionamento è riassunto nelle seguenti operazioni (vedi figura 4.10 (a)):

1. l'utente apre il *file* contenente la traccia da analizzare, memorizzato grazie a una CCD.
2. l'utente seleziona con il puntatore il punto di deflessione nulla e il programma traccia le parabole che partono da questo punto.
3. l'utente inserisce i valori dei campi in modo da far sovrapporre le parabole tracciate dal *software* a quelle dello spettrometro.

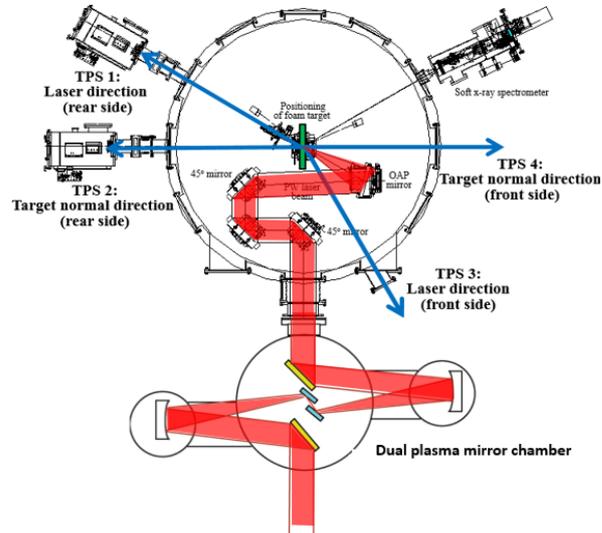


Figura 4.8: è rappresentato uno schema della camera d'interazione. In basso si vede la disposizione dei due *Plasma Mirror* in successione, mentre in alto è mostrata la configurazione del fascio e del bersaglio con il relativo apparato di diagnostica degli ioni accelerati (TPS sta per *Thomson Parabola Spectrometer*).

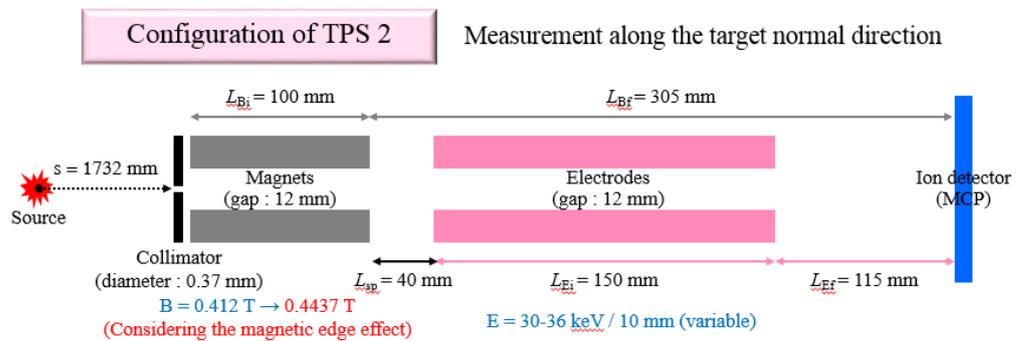


Figura 4.9: configurazione di uno spettrometro a Parabola Thomson, usato nel 2014 per rilevare gli ioni accelerati in direzione normale al bersaglio.

- il programma integra il segnale di 5 *pixel* adiacenti alla parabola sulla coordinata di deflessione del campo elettrico (cioè alla coordinata y facendo riferimento all'equazione 2.16) e calcola lo spettro energetico invertendo la relazione 2.14, la quale lega la coordinata di deflessione dovuta al campo magnetico (x in questo caso) e l'energia della particella.

Da figura 4.10 (b) si nota che gli spettri ottenuti con TIARRA possiedono un basso

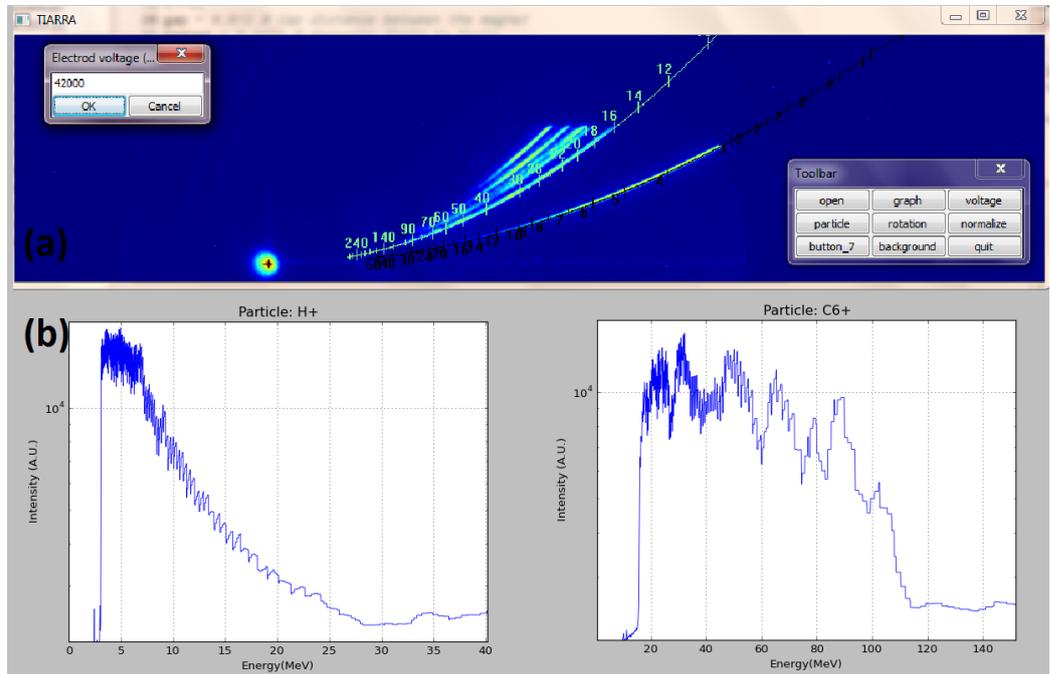


Figura 4.10: in (a) si vede la tipica finestra di dialogo di TIARRA: il punto di deflessione nulla è selezionato manualmente, mentre il campo elettrico viene variato in modo da interpolare la traccia della CCD. In (b) sono mostrati gli spettri energetici in unità arbitraria ottenuti con TIARRA, di ioni accelerati nel 2014 nelle seguenti condizioni: intensità $4 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 30° , polarizzazione P.

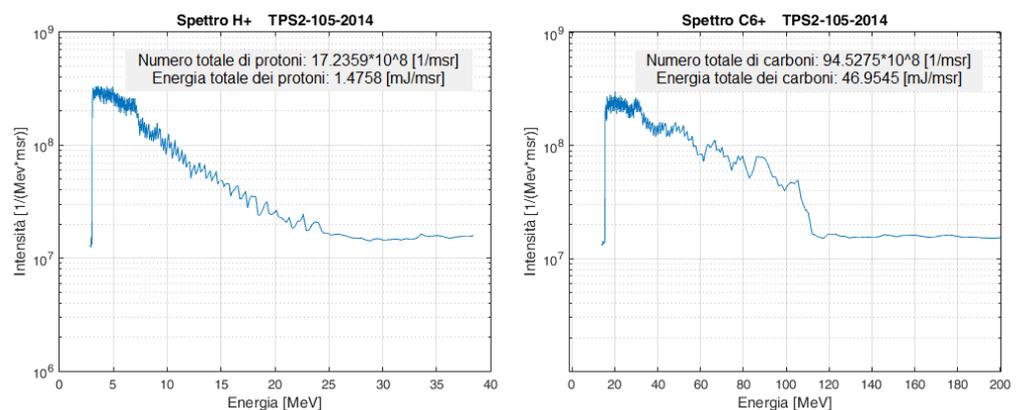


Figura 4.11: spettri energetici ottenuti con il programma sviluppato in questo lavoro di tesi, di protoni e ioni Carbonio ottenuti nel 2014 nelle medesime condizioni di figura 4.10.

rapporto segnale-rumore. Questo complica la determinazione dell'energia di *cut-off* nel caso dei protoni, la quale è invece uno dei parametri fondamentali nella caratterizzazione del processo di accelerazione, e delle altre proprietà fondamentali dello spettro (come l'energia totale accelerata). Queste problematiche sono associate al fatto che lo spettro energetico è esponenziale (vedi capitolo 1) e dunque la traccia degli ioni a elevate energie è molto sottile; il programma invece somma il segnale di 5 *pixel* senza discriminare il segnale dal rumore, amplificando di conseguenza il rumore di fondo. D'altra parte, a basse energie la traccia è in generale più spessa di 5 *pixel* e dunque parte del segnale viene tagliato da questa integrazione. Inoltre queste operazioni sono piuttosto laboriose e non possono essere adottate per l'analisi di esperimenti svolti ad alta frequenza di ripetizione, come sarà richiesto in futuro per la produzione di fasci di ioni.

E' stato dunque da me sviluppato in MATLAB un nuovo *software* che permettesse di risolvere queste problematiche e potesse analizzare i dati delle CCD con una procedura automatica, ottenendo spettri energetici maggiormente definiti.

In particolare il nuovo programma permette di riconoscere automaticamente le tracce dello spettrometro, evitando la procedura manuale di individuazione del punto di deflessione nulla e di ottimizzazione dei parametri per interpolare la parabola. Per determinare il punto di deflessione nulla il *software* individua il punto di intensità massima nella immagine CCD, mentre utilizza il metodo di Hough (uno strumento in grado di individuare curve di equazione arbitraria [67]) per trovare le equazioni che descrivono le tracce paraboliche. In questo specifico caso il metodo funziona in questo modo: note le coordinate del vertice della parabola (che corrisponde al punto di deflessione nulla), l'equazione della parabola $y - y_0 = a \cdot (x - x_0)^2$ possiede il solo parametro libero a , che viene determinato con questo algoritmo:

1. l'immagine CCD viene convertita in un'immagine binaria attraverso un filtro, cioè quando il *pixel* possiede un'intensità maggiore di una determinata soglia, allora ad esso viene dato il valore di 1, altrimenti viene posto uguale a 0.
2. per ogni punto pari a 1 dell'immagine binaria viene invertita l'equazione della parabola e viene calcolato il coefficiente $a = (y - y_0)/(x - x_0)^2$.
3. l'insieme dei valori a viene quindi raccolto in una distribuzione $f(a)$ che ha il nome di trasformata di Hough. Poichè il parametro libero è solo uno, essa avrà una sola dimensione e avrà una caratteristica forma a picchi, come mostrato in figura 4.12.
4. i picchi corrispondono ai diversi coefficienti a delle parabole; essi vengono riconosciuti e vengono tracciate sull'immagine CCD le tracce relative ai protoni e agli ioni Carbonio.

Una volta note le equazioni delle parabole, il segnale della CCD viene così elaborato: al segnale del *pixel* che giace sulla parabola viene sommato il segnale del *pixel* adiacente (sopra e sotto, facendo riferimento a figura 4.12) solo nel caso in cui il suo valore superi quello del rumore di fondo e in questo caso all'intensità viene sottratto il *background*. In questo modo il rumore dello spettro sarà considerato solo una volta e non sarà moltiplicato per 5, come invece viene fatto dal *software* TIARRA.

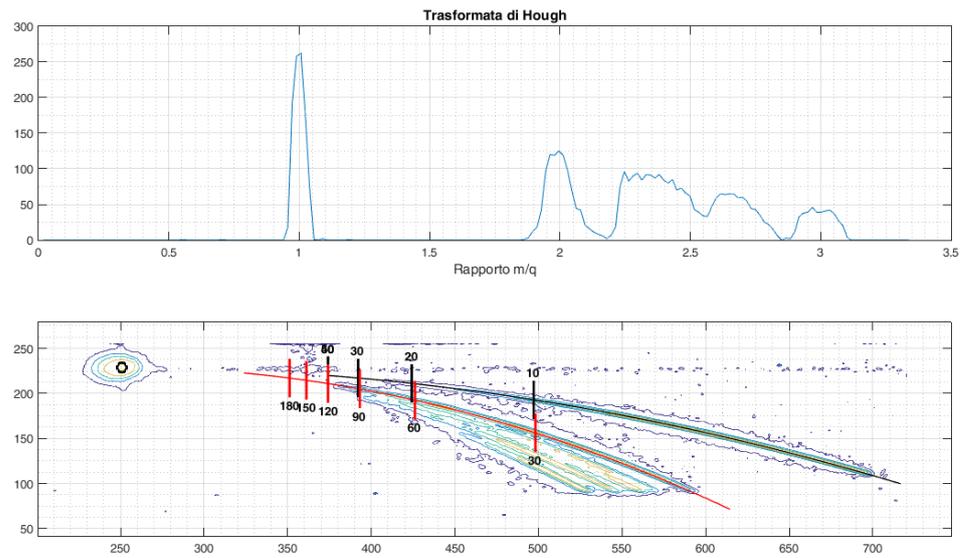


Figura 4.12: nel riquadro superiore è mostrata la trasformata di Hough in funzione del rapporto m/q che definisce le parabole associate alle diverse specie accelerate; nel riquadro inferiore è rappresentata l'immagine acquisita dalla CCD attraverso una funzione che mostra le curve di isolivello, sulla quale sono tracciate le parabole associate ai primi due picchi della trasformata di Hough, cioè quelle di protoni e di ioni Carbonio.

Gli spettri vengono ottenuti invertendo la relazione 2.14, dove i parametri geometrici e i campi del TPS (come quelli osservabili in figura 4.9) sono inseriti a priori nel programma. In questo modo viene eliminata la fase di ottimizzazione del campo elettrico da effettuare manualmente in TIARRA, inoltre le intensità dello spettro vengono immediatamente convertite nell'unità di misura usata tipicamente $[1/(MeV * msr)]$, rendendo anche possibile il calcolo del numero di particelle totali e l'energia ad esse associata (utile per comprendere l'efficienza del processo di accelerazione).

In figura 4.11 si possono osservare gli spettri ottenuti con questo *software*, da confrontare con quelli di figura 4.10: lo spettro è più definito e l'energia massima dei protoni è immediatamente individuabile (in questo caso è pari a 24 MeV), inoltre si osserva che

lo spettro degli ioni Carbonio non è attenuato a basse energie e si riconosce il tipico andamento esponenziale (lineare in scala logaritmica).

Nell'anno 2015 sono state apportate delle modifiche ai 4 spettrometri, infatti è stato ridotto il diametro dei collimatori (ad esempio per il TPS2 si è passati da 0.37 cm a 0.28 cm , per il TPS1 da 0.37 cm a 0.18 cm); ciò è stato fatto per diminuire lo spessore della traccia impressa sulla CCD (come si evince dalla relazione 2.17) in modo da distinguere le parabole delle diverse specie in prossimità del punto di deflessione nulla, cioè per la parte più energetica dello spettro. In quest'ottica sono state anche cambiate le CCD, aumentandone la risoluzione di circa il triplo (si è passati da 51 pixel/mm^2 a 156 pixel/mm^2); mentre il sistema di raccolta della luce prodotta dall'MCP è stato migliorato con un incremento della sensibilità di circa 16 volte.

4.5 **Analisi dei risultati di esperimenti di accelerazione di ioni da laser**

4.5.1 **Problematiche**

I campioni multistrato con schiume di Carbonio a densità vicine a quella critica, fabbricati al NanoLab con le tecniche illustrate nei capitoli precedenti, sono stati irraggiati con impulsi ultrabrevi e superintensi al CoReLS, in Corea del Sud. L'interazione tra laser e bersaglio ha prodotto ioni accelerati che sono stati rivelati con 4 spettrometri a Parabola Thomson.

Le modifiche apportate agli spettrometri descritte nel paragrafo precedente sono state effettuate con l'intento di riuscire a rilevare con precisione le componenti più energetiche degli ioni, tuttavia il risultato è stato quello di aumentare il rumore degli spettri. Infatti il collimatore più piccolo ha ridotto il numero di particelle rivelate e questo fattore, unito all'aumento di densità di *pixel* della CCD, ha incrementato notevolmente la fluttuazione statistica portando a tracce meno definite, soprattutto ad alte energie. Nell'esempio di figura 4.13 sono mostrati gli spettri di ioni accelerati mediante interazione di impulsi con bersagli di Al micrometrici nelle due diverse condizioni del 2014 e del 2015; poichè nei due casi i parametri di laser sono simili, gli spettri mostrano un andamento e un'energia massima confrontabili, tuttavia in quelli del 2015 il rumore di fondo è inferiore (a causa dell'aumento di densità di pixel e del collimatore ridotto) e le fluttuazioni statistiche degli spettri sono molto più evidenti.

L'aumento di rumore associato a questi fattori non è sempre risultato un problema, infatti, come si visto in figura 4.13, l'energia massima degli spettri raccolti dalla TPS2 è ancora distinguibile; in alcuni casi però l'analisi è risultata molto più difficoltosa. Quando i bersagli sono stati irraggiati a incidenza quasi-normale (2.5°) gli spettri risultanti han-

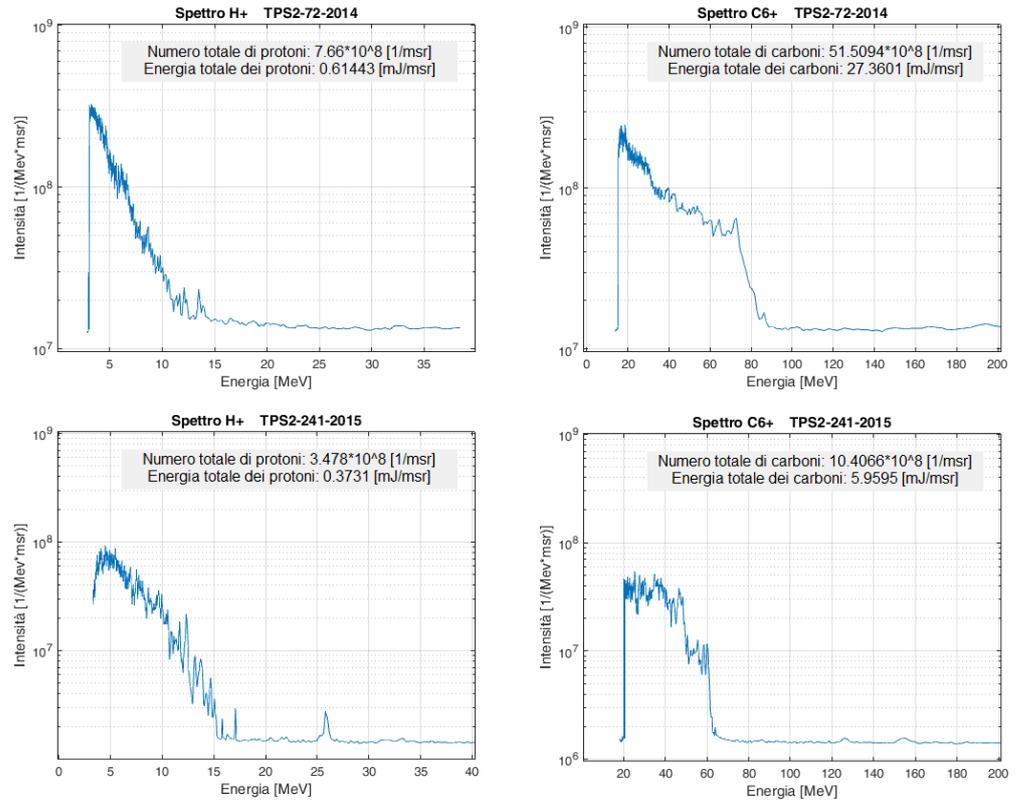


Figura 4.13: spettri energetici di protoni e ioni Carbonio, ottenuti con il programma sviluppato in questo lavoro di tesi. Gli spettri della parte superiori sono di ioni accelerati nel 2014 con un bersaglio di $0.75 \mu m$ di Al, con i seguenti parametri laser: durata $33 fs$, energia $31.5 J$, incidenza 30° ; la misura è stata effettuata con il TPS2 con diametro del collimatore di $0.37 cm$ e CCD con densità di $51 pixel/mm^2$. Gli spettri della parte inferiore sono di ioni accelerati nel 2015 con un bersaglio di $0.75 \mu m$ di Al, con i seguenti parametri laser: durata $33 fs$, energia $37.5 J$, incidenza 30° ; la misura è stata effettuata con il TPS2 con diametro del collimatore di $0.28 cm$ e CCD con densità di $156 pixel/mm^2$ e sistema di raccolta della luce 16 volte più sensibile.

no mostrato un segnale particolarmente basso e un elevato rumore statistico, ne sono un esempio gli spettri di figura 4.14. Ciò è dovuto al fatto che i TPS della camera, la cui disposizione è mostrata in figura 4.8, sono in posizioni fissate e, poichè gli ioni accelerati dal bersaglio sono generati con una distribuzione che ha un massimo lungo la normale (in particolare ad alte energie, vedi figura 4.15), il segnale misurato dal TPS1 corrisponde a quello della coda della distribuzione, per cui risulta essere notevolmente inferiore. La riduzione dei collimatori ha incrementato questo effetto e ha reso di difficile individuazione

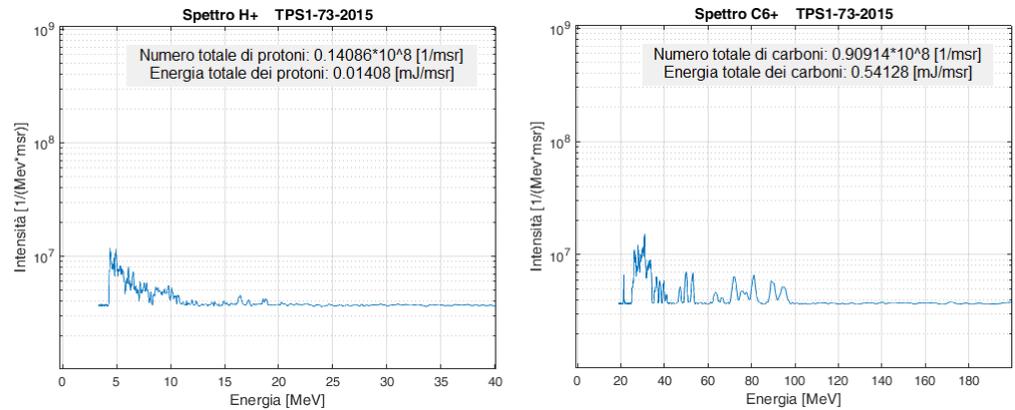


Figura 4.14: spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio di 20 nm di polimero con i seguenti parametri laser: durata 33 fs, energia 37.5 J, incidenza 2.5°; le misure sono state ottenute con il TPS1 con diametro del collimatore di 0.18 cm e CCD con densità di 156 pixel/mm².

l'energia massima degli ioni accelerati da laser a incidenza quasi-normale. Per questo motivo si considera che i risultati ottenuti con incidenza a 30° forniscano evidenze sperimentali più attendibili rispetto a quelli con incidenza quasi-normale.

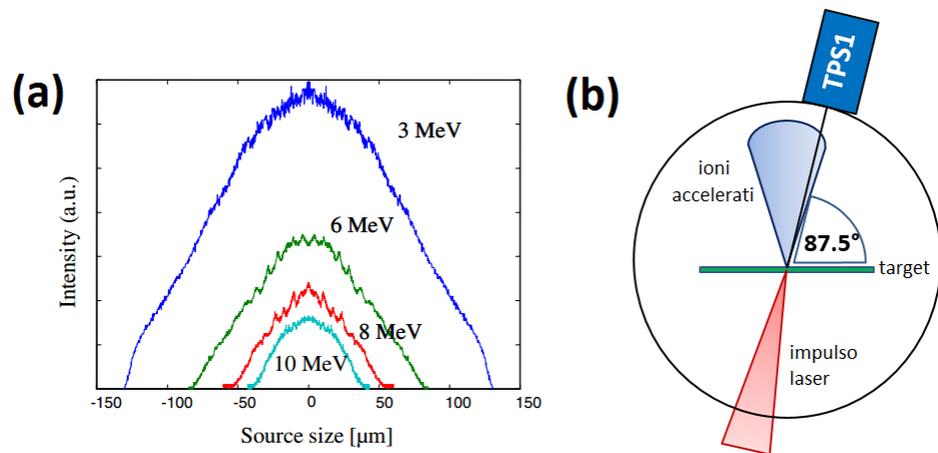


Figura 4.15: in (a) è mostrata la dimensione trasversale della sorgente di protoni generati da impulsi laser, per differenti energie dei protoni. Da [68]. In (b) sono schematizzate le condizioni di irraggiamento a incidenza quasi-normale (2.5°); la parte più energetica degli ioni non è emessa in direzione del TPS1 e il segnale misurato è molto attenuato.

In aggiunta sono state riscontrate ulteriori problematiche: in determinati giorni le energie degli ioni accelerati erano sistematicamente inferiori rispetto ad altri giorni e in

generale tutti i dati raccolti nel 2015 hanno mostrato energie inferiori di quelle ottenute nel 2014. Perciò i dati sono stati confrontati solamente all'interno della campagna sperimentale stessa (escludendo i giorni "sfortunati"), senza poter effettuare un confronto affidabile con gli esperimenti del 2014.

4.5.2 Analisi degli spettri di ioni da bersagli micrometrici

A causa delle problematiche viste nel paragrafo precedente, non è stato possibile confrontare tutti i dati raccolti dall'irraggiamento dei campioni descritti nella tabella 4.2, tuttavia è stato possibile ottenere alcune informazioni utili. Come espresso nel paragrafo 4.1, i diversi tipi di *target* sono stati esposti a impulsi superintensi e ultrabrevi, di cui si sono variati alcuni parametri: l'intensità è stata variata cambiando il numero di *stage* di amplificazione (cioè l'energia), da circa $1.5 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$ a circa $7 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$, mentre per la polarizzazione e l'incidenza si sono usate due sole condizioni, incidenza 30° con polarizzazione P (P-pol) e incidenza 2.5° con polarizzazione circolare (C-pol).

Le analisi dei risultati ottenuti da bersagli micrometrici ($0.75\text{-}12 \mu\text{m}$) hanno innanzitutto evidenziato l'assenza di segnale al di fuori della direzione normale al bersaglio (TPS1 e TPS3 per incidenza a 30° , TPS2 e TPS4 per incidenza a 2.5°), mentre sono sempre stati misurati ioni energetici dal TPS posto di fronte al *target* (TPS4 per incidenza a 30° , TPS3 per incidenza a 2.5°) con energie sistematicamente inferiori rispetto a quelli misurati dallo strumento posto sul lato *rear*; ciò avviene perché gli elettroni caldi generati dall'interazione tra laser e bersaglio retrodiffondono e formano una nuvola elettronica accelerante anche sull'interfaccia frontale, anche se con densità inferiori. Ciò indica che il meccanismo di accelerazione è simile al TNSA.

Un altro importante risultato di questa analisi è stata la conferma dell'efficacia dei bersagli multistrato nel migliorare il meccanismo di accelerazione. Come è possibile vedere in figura 4.16, la presenza della schiuma su substrati di $0.75 \mu\text{m}$ di Al ha incrementato le energie degli ioni. In particolare, per incidenza quasi-normale e C-pol, il massimo aumento corrisponde a $8 \mu\text{m}$ di film, mentre per incidenza a 30° , P-pol, non è possibile individuare un punto di massimo a causa dei pochi punti sperimentali, anche se è lecito pensare che anche a quest'angolo di incidenza il punto di massima energia corrisponda a circa $8 \mu\text{m}$ di *foam*, infatti gli esperimenti precedenti hanno evidenziato un'energia massima per questo valore di spessore. Inoltre è di particolare interesse osservare che, per i due punti sperimentali comuni alle due condizioni di incidenza (3 e $5 \mu\text{m}$ di schiuma), le energie dei protoni sono simili e ciò suggerisce che il meccanismo di accelerazione, nel caso di substrati micrometrici, dipenda poco, non solo dalla polarizzazione (come dimostrato dagli esperimenti precedenti), ma anche dall'angolo di incidenza.

I dati sperimentali hanno inoltre mostrato che, a parità di spessore di film, l'aumento dello spessore del substrato diminuisce l'energia massima degli ioni (vedi figura 4.17).

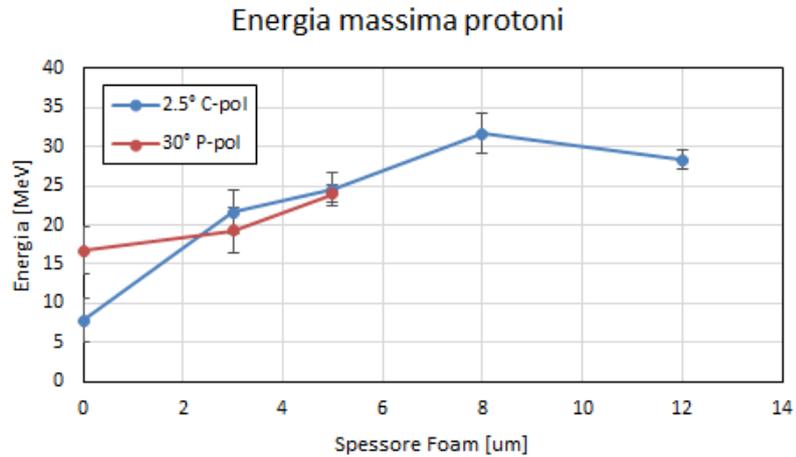


Figura 4.16: sono rappresentate le energie di *cut-off* di protoni in funzione dello spessore di film di C, generati dall'irraggiamento di campioni con substrato di $0.75 \mu m$ di Al e con le seguenti condizioni: intensità $7 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 2.5° e C-pol (in blu), incidenza 30° e P-pol (in rosso).

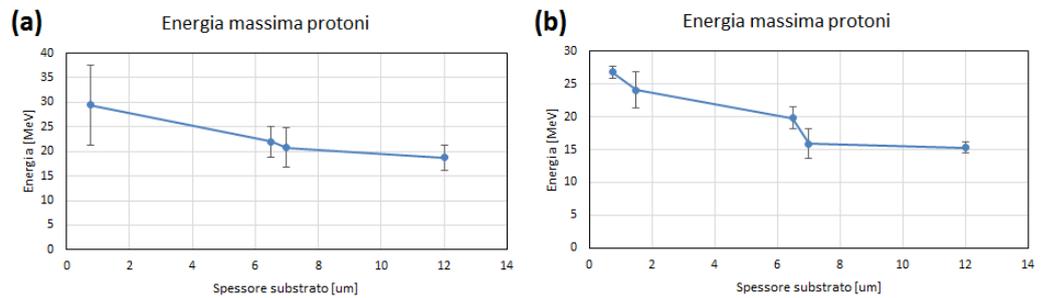


Figura 4.17: sono rappresentate le energie di *cut-off* di protoni in funzione dello spessore del substrato, con spessore di film fissato a $8 \mu m$, generati con le seguenti condizioni di irraggiamento: intensità $7 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 2.5° e C-pol (figura (a)), incidenza 30° e P-pol (figura (b)).

Questa evidenza sperimentale è interpretabile nel seguente modo: gli elettroni energetici, generati all'interno del film dall'impulso laser, si propagano all'interno del substrato con un angolo di divergenza in prima approssimazione costante (paragrafo 1.4.2) e quindi formano una nuvola elettronica di maggiore densità (e quindi a campi di accelerazione più intensi) nel caso in cui la dimensione del substrato sia inferiore. Nell'ottica di future applicazioni, è interessante osservare che si ottengono energie non trascurabili anche per spessori molto grandi (circa $20 MeV$ per $12 \mu m$ di Al), superiori a quelle ottenibili con

bersagli convenzionali sottili (circa 15 MeV per $0.75 \mu\text{m}$ di Al); infatti fogli di Alluminio di alcuni μm sono realizzati industrialmente con molta facilità e possiedono il vantaggio di essere molto robusti e di facile utilizzo (ad esempio i rotoli da cucina misurano circa $10 \mu\text{m}$ di spessore).

4.5.3 Analisi degli spettri di ioni da bersagli *ultrathin*

In questo lavoro di tesi mi sono dedicato in particolare all'analisi di ioni accelerati da bersagli *ultrathin*, cioè dei bersagli con substrato polimerico di spessore 20 nm . Gli obiettivi di questa analisi sono stati il confronto dell'energia degli ioni emessi dal bersaglio convenzionale con il bersaglio multistrato, nelle due diverse condizioni di incidenza e della dipendenza dell'energia massima degli ioni, dallo spessore della schiuma di C.

Anche per bersagli sottili, le analisi hanno evidenziato la presenza di segnale solo lungo la direzione normale al *target*, con energie maggiori sul lato *rear*, cioè lungo la TPS2 per incidenza a 30° e lungo la TPS1 per incidenza a 2.5° .

Per quanto riguarda l'incidenza a 30° e P-pol, si osserva innanzitutto che l'energia cresce con l'intensità sia per bersagli convenzionali che per bersagli multistrato come è ampiamente dimostrato in letteratura (vedi figura 4.19). Inoltre gli spettri, rivelati in direzione normale al *target* (TPS2), hanno mostrato un andamento esponenziale continuo, tipico del meccanismo TNSA (paragrafo 1.3.3), anche nel caso di bersagli con schiume.

La presenza del film, in questa condizione di incidenza, ha mostrato inaspettatamente una bassa efficienza nel migliorare il fenomeno, infatti, per spessori di schiuma di $8 \mu\text{m}$, l'energia dei protoni è stata incrementata di poco rispetto ai campioni convenzionali *ultrathin*, di cui è mostrato un esempio in figura 4.18. Mentre per spessori elevati di film l'energia di *cut-off* si è perfino ridotta.

Se invece consideriamo gli esperimenti effettuati a incidenza quasi-normale e con C-pol, si sono osservati i seguenti risultati: le energie massime degli ioni crescono con l'intensità con un andamento che sembra non lineare, sia per bersagli convenzionali che per bersagli multistrato (vedi figura 4.20). Nello stessa figura si rivela un incremento incisivo di energia di *cut-off* dovuto alla schiuma di C per lo spessore ottimale di $8 \mu\text{m}$. La figura 4.21 mostra uno spettro esemplificativo, generato da campioni con e senza schiuma, irraggiati da impulsi con intensità pari a circa $7 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$; dal confronto si riscontra uno spettro continuo e di forma esponenziale con un'energia di *cut-off* dei protoni che aumenta nel caso di bersagli multistrato, da circa 15 MeV di energia massima a circa 30 MeV e con un incremento nel numero di particelle da $1.4 \cdot 10^7 \text{ particelle/msr}$ a $6 \cdot 10^7 \text{ particelle/msr}$. Riguardo a questi risultati è importante ricordare che le misure effettuate a incidenza quasi-normale sono determinate da un basso rapporto segnale-rumore, per cui è ragionevole pensare che le energie massime rivelate dal TPS1 sono inferiori a quelle reali; perciò ci si

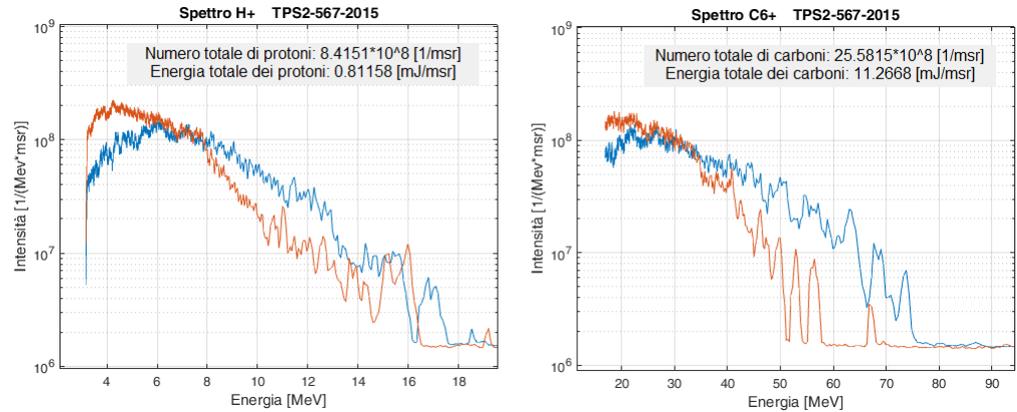


Figura 4.18: spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio di 20 nm di polimero (in arancione) e con un bersaglio multistrato 20 nm polimero - 8 μm schiuma di C (in blu), con i seguenti parametri laser: durata 33 fs, energia prima del compressore 44 J, intensità $7 \cdot 10^{20}$ W/cm², incidenza 30°, polarizzazione P; le misure sono state ottenute con il TPS2 con diametro del collimatore di 0.28 cm e CCD con densità di 156 pixel/mm².

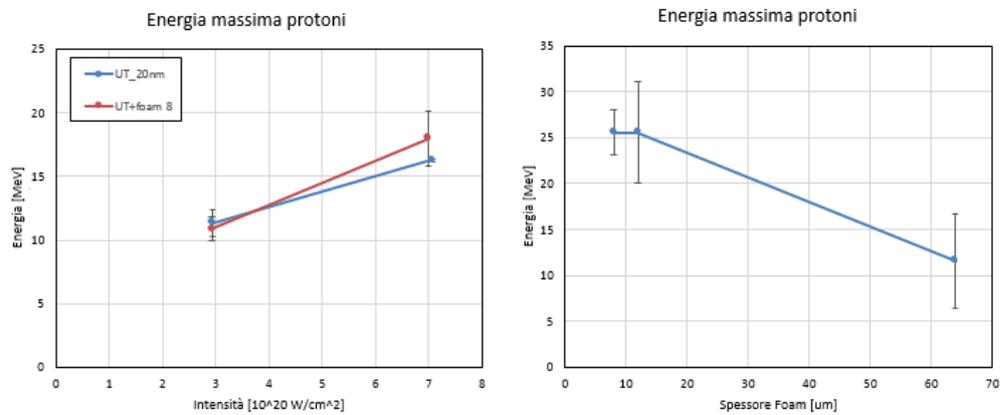


Figura 4.19: nel grafico di sinistra è mostrata l'energia di *cut-off* dei protoni in funzione dell'intensità, nel caso di bersagli convenzionali e bersagli multistrato; nel grafico di destra è mostrata la dipendenza dell'energia massima dallo spessore della *foam*. I risultati sono ottenuti con incidenza 30° e P-pol.

aspetta di osservare in futuri esperimenti un aumento ulteriore delle energie di *cut-off* dei due tipi di *target*.

Inoltre le due diverse condizioni di incidenza sono state confrontate mostrando evidenti differenze; in figura 4.22 sono state rappresentate le energie massime di protoni in

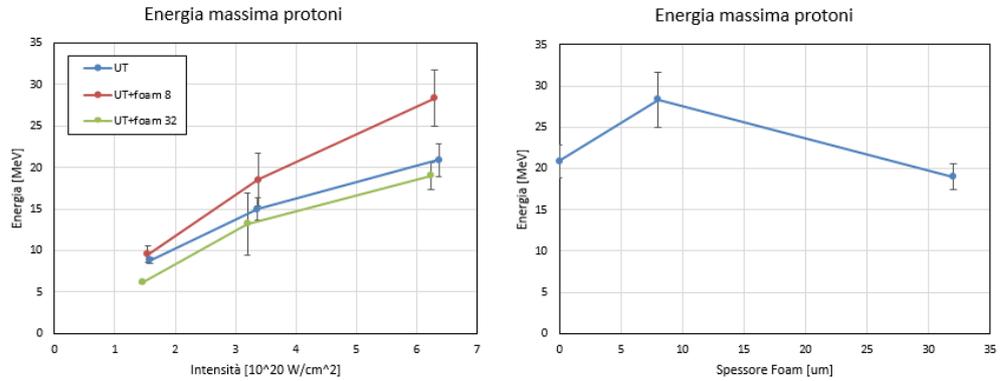


Figura 4.20: nel grafico di sinistra è mostrata l'energia di *cut-off* dei protoni in funzione dell'intensità, nel caso di bersagli convenzionali e bersagli multistrato; nel grafico di destra è mostrata la dipendenza dell'energia massima dallo spessore della *foam*. I risultati sono ottenuti con incidenza 2.5° e C-pol.

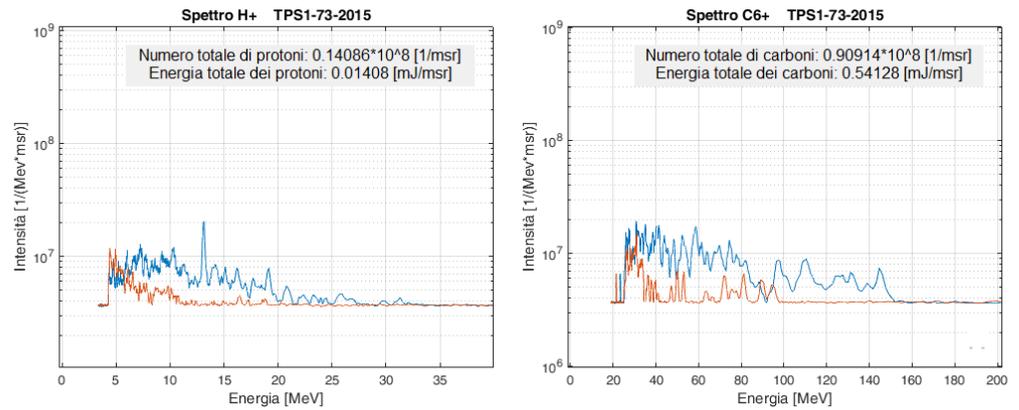


Figura 4.21: spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio di 20 nm di polimero (in arancione) e con un bersaglio multistrato 20 nm polimero - $8 \mu\text{m}$ schiuma di C (in blu), con i seguenti parametri laser: durata 33 fs , energia prima del compressore 44 J , intensità $7 \cdot 10^{20} \text{ W/cm}^2$, incidenza 2.5° , polarizzazione C; le misure sono state ottenute con il TPS1 con diametro del collimatore di 0.18 cm e CCD con densità di 156 pixel/mm^2 .

funzione dell'intensità per i diversi bersagli, e si osserva un miglioramento del processo di accelerazione nel caso di incidenza quasi-normale e C-pol, sia per *target* con schiume che senza. Queste evidenze sperimentali hanno suscitato interesse in quanto generalmente impulsi incidenti normalmente su un bersaglio micrometrico, con polarizzazione circolare,

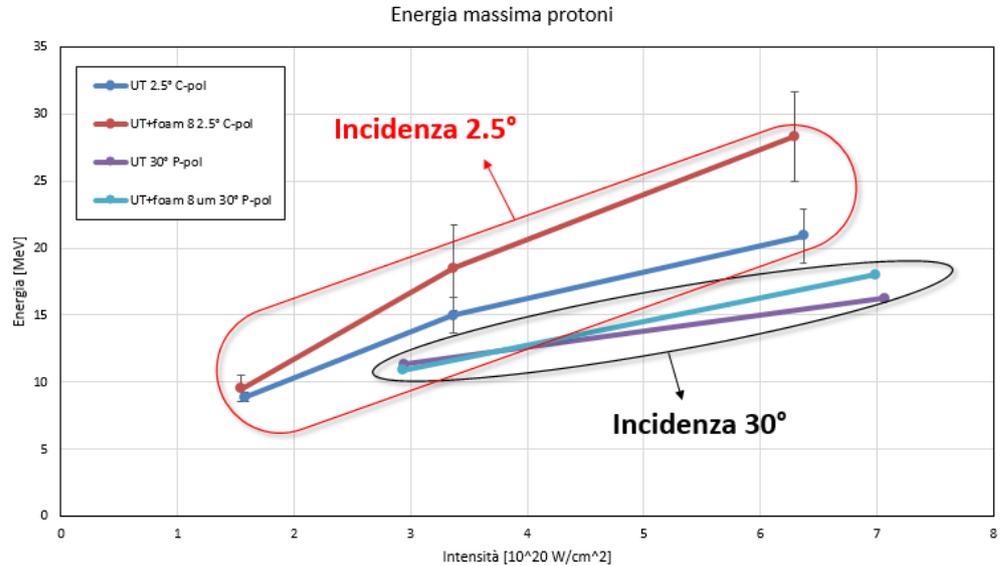


Figura 4.22: è mostrata l'energia di *cut-off* dei protoni in funzione dell'intensità, nel caso di bersagli convenzionali e bersagli multistrato e per le diverse condizioni di irraggiamento (2.5° incidenza, C-pol o 30° incidenza, P-pol); le energie ottenute a incidenza quasi normale sono sistematicamente più alte.

producono elettroni caldi con minor efficienza rispetto a incidenza non-normale e polarizzazione P (vedi paragrafi 1.2 e 1.4.4) e dunque portano a energie inferiori di ioni accelerati; ciò è osservabile anche dai dati rappresentati in figura 4.16, dove i bersagli di Al senza film mostrano energie di circa 8 e 16 MeV, ottenute rispettivamente a incidenza quasi-normale e C-pol e incidenza a 30° e P-pol. Queste considerazioni portano a ritenere che, nonostante gli spettri abbiano qualità consistenti con il processo di TNSA (continui ed esponenziali), il processo di accelerazione non sia considerabile come un meccanismo TNSA tradizionale, il che rende ulteriormente complicata la comprensione del fenomeno.

I risultati ottenuti con *target* con substrati *ultrathin* sono stati confrontati a quelli ottenuti con substrati micrometrici. In figura 4.23 è rappresentata l'energia massima di protoni in funzione dello spessore della schiuma, nel caso di incidenza quasi-normale, e si vede che, sia per substrato micrometrico che *ultrathin*, l'incremento di energia dovuto al film è massimo in corrispondenza di 8 μm di spessore. Da figura 4.24 si nota che lo spettro energetico ottenuto nella configurazione di 8 μm di schiuma è molto simile per i diversi tipi di substrato e questo porta a concludere che il processo di accelerazione, nel caso di incidenza quasi-normale, dipenda fortemente dal film e poco dal tipo di substrato utilizzato, a condizione che sia sufficientemente sottile ($< 1 \mu\text{m}$). In queste condizioni si sono ottenuti i risultati migliori in termini di energia massima di protoni (fino a 34 MeV

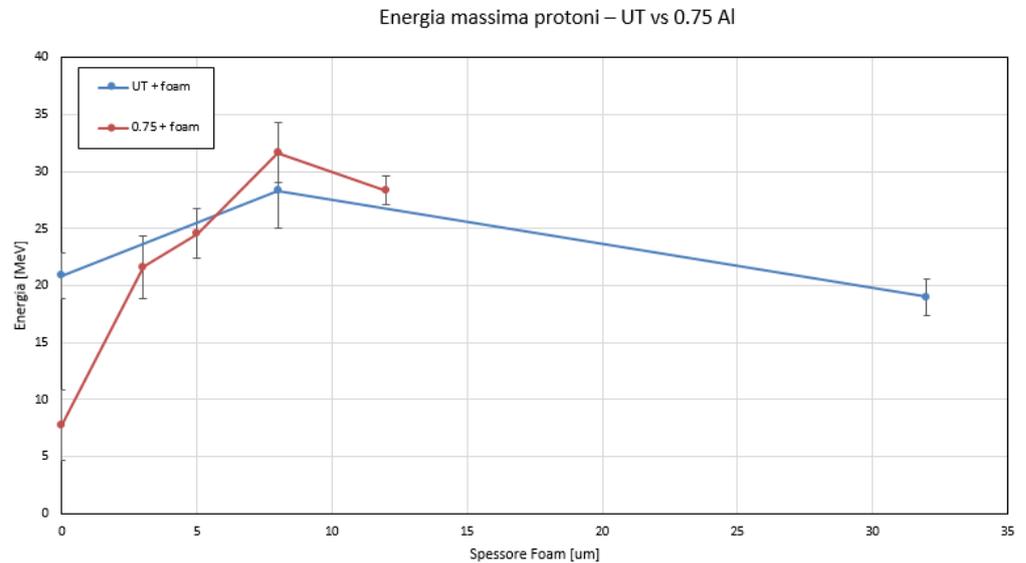


Figura 4.23: è mostrata l'energia di *cut-off* dei protoni in funzione dello spessore del film di schiuma di C, nel caso di bersagli con substrato micrometrico e *ultrathin*, nella condizione di irraggiamento di circa $6 \cdot 10^{20} W/cm^2$ di intensità, 2.5° di incidenza e C-pol.

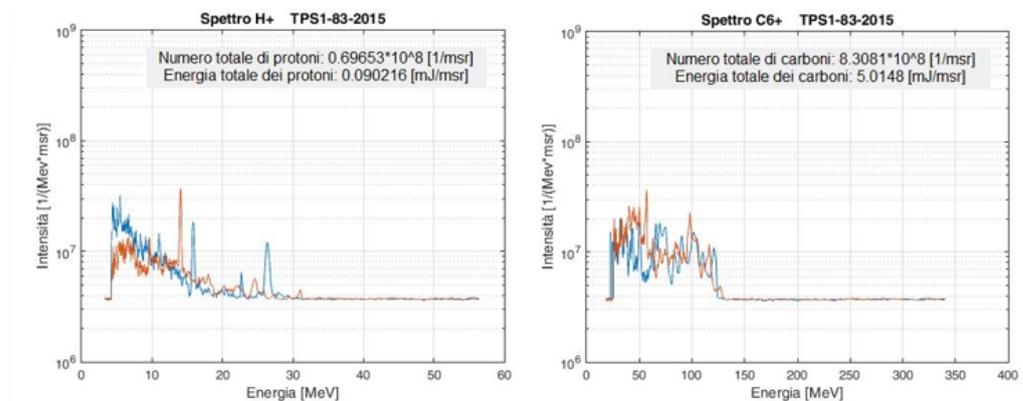


Figura 4.24: spettri energetici di protoni e ioni Carbonio. Gli ioni sono stati accelerati nel 2015 con un bersaglio multistrato di $20 nm$ polimero - $8 \mu m$ schiuma di C (in blu) e con un bersaglio multistrato di $0.75 \mu m$ Al - $8 \mu m$ schiuma di C (in arancione), con i seguenti parametri laser: durata $33 fs$, energia prima del compressore $37.5 J$, intensità $6 \cdot 10^{20} W/cm^2$, incidenza 2.5° , polarizzazione C; le misure sono state ottenute con il TPS1 con diametro del collimatore di $0.18 cm$ e CCD con densità di $156 pixel/mm^2$.

con intensità di $6 \cdot 10^{20} W/cm^2$).

Mentre nella condizione di incidenza a 30° e P-pol si ottengono risultati differenti

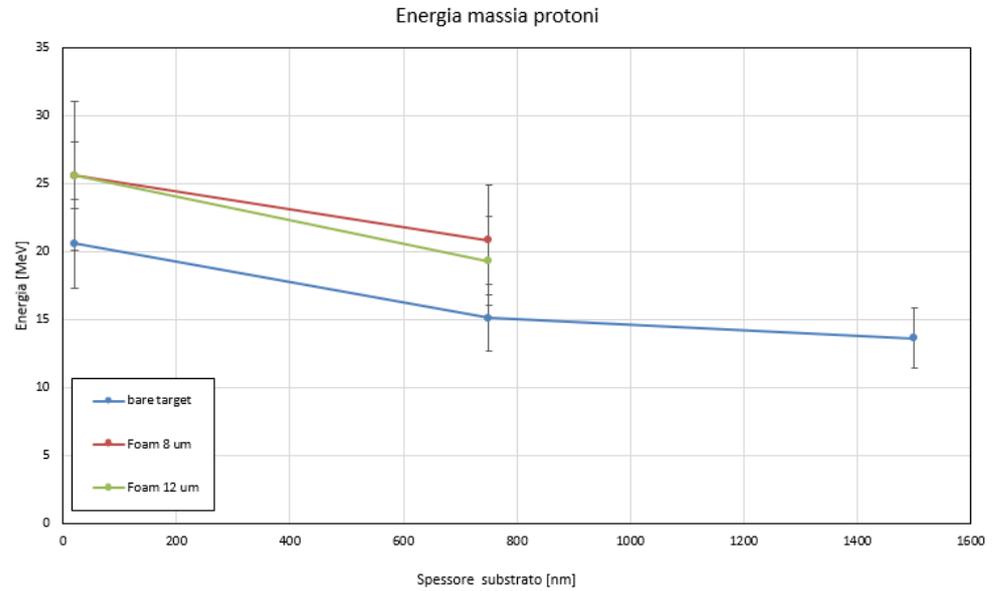


Figura 4.25: è mostrata l'energia di *cut-off* dei protoni in funzione dello spessore del substrato, nel caso di bersagli convenzionali (*bare target*) e multistrato (*foam*), nella condizione di irraggiamento di circa $7 \cdot 10^{20} W/cm^2$ di intensità 30° di incidenza e P-pol.

(vedi figura 4.25): il substrato possiede una grande influenza sull'energia di *cut-off*, infatti a minor spessore corrisponde maggiore energia, sia per bersagli multistrato che per bersagli convenzionali. Ciò è consistente con la riduzione di energia massima per spessori crescenti, esposto nel precedente paragrafo per bersagli micrometrici, per cui potrebbe essere un effetto della diminuzione della densità degli elettroni, che si propagano con angolo di divergenza costante nel substrato.

Il fatto che in diverse condizioni di incidenza si ottengano evidenze sperimentali così differenti, non descrivibili con un modello puramente TNSA, spinge a indagare ulteriormente, sia dal punto di vista sperimentale che teorico e numerico, sul processo di accelerazione che avviene nel caso di bersagli multistrato, con schiume di densità vicine a quella critica.

Capitolo 5

Conclusioni e sviluppi futuri

In questo lavoro di tesi sono stati affrontati diversi aspetti volti alla realizzazione di un esperimento di accelerazione di ioni, mediante interazione di impulsi laser ultrabrevi e superintensi con bersagli solidi nanostrutturati.

I primi due capitoli hanno avuto scopo introduttivo. Il primo capitolo ha introdotto i concetti fondamentali per la comprensione del fenomeno di accelerazione: a partire da brevi cenni sulla tecnologia che permette la generazione di impulsi ultrabrevi, superintensi e sull'interazione di radiazione elettromagnetica con plasmi, fino alla descrizione del processo di accelerazione che si sviluppa più frequentemente, la *Target Normal Sheath Acceleration* (TNSA).

Nel secondo capitolo si sono, invece, illustrate le tecniche sperimentali coinvolte in un esperimento di accelerazione di ioni da bersagli non convenzionali: *Pulsed Laser Deposition* (PLD) con impulsi a *ns* e *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (EDXS) sono usate per produrre e caratterizzare bersagli multistrato, mentre rivelatori a Parabola Thomson sono usati per la diagnostica di ioni accelerati.

Il terzo e quarto capitolo presentano i principali risultati ottenuti da questo lavoro. Nel terzo capitolo è stata sviluppata, in diverse direzioni, la tecnica di caratterizzazione di film sottili basata sull'EDXS: attraverso alcuni metodi e modelli si è aumentata l'accuratezza delle misure di spessore massico per film di diverse morfologie (da compatti a porosi). Si è inoltre ottenuta una risoluzione dell'equazione del trasporto per campioni multistrato con una precisione simile a quella di altri metodi comunemente utilizzati (codici Montecarlo) e con un tempo di calcolo inferiore, risultato ottenuto per la prima volta in questo lavoro. Inoltre questi sviluppi di tecnica hanno permesso di determinare, con migliore precisione, la densità delle schiume di Carbonio prodotte presso il laboratorio di Materiali Micro- e Nanostrutturati (NanoLab) del Politecnico di Milano. Sulla base dei risultati ottenuti in questo capitolo, si è mostrato che la densità di questi film è pari a 11.1 mg/cm^3 ($1.95 n_c$),

con un errore entro il 5%, valore maggiore di quello misurato con la tecnica *standard*, pari a 6.8 mg/cm^3 ($1.2 n_c$).

Il quarto capitolo ha descritto le tematiche connesse ad un esperimento di accelerazione di ioni da laser, realizzato in collaborazione con il *Centre of Relativistic Laser Science* (CoReLS), in Corea del Sud: sulla base delle conoscenze precedenti e dei nuovi risultati ottenuti nel capitolo 3, è stato possibile produrre e caratterizzare bersagli multistrato, presso il NanoLab. Ho inoltre svolto un'analisi preliminare dei risultati sperimentali ottenuti dall'irraggiamento dei bersagli prodotti. Un nuovo *software* è stato sviluppato per l'occasione e ha facilitato questa analisi, permettendo di ottenere spettri energetici di ioni con maggior rapporto segnale-rumore e con una procedura automatica più efficiente. I risultati dell'analisi dei dati sperimentali, seppur preliminare, ha confermato i dati ottenuti negli esperimenti precedenti: un aumento dell'energia degli ioni nei campioni con schiume di Carbonio con un incremento massimo per spessori di $8 \mu\text{m}$ di film. Il lavoro svolto nel capitolo 3 ha mostrato che le schiume hanno densità circa doppia la densità critica; ciò permette di affermare che, nonostante il film sia classicamente opaco alla radiazione incidente, gli effetti di trasparenza relativistica indotti dall'elevata intensità, rendono trasparenti le schiume, con un conseguente aumento dell'accoppiamento tra laser e bersaglio. Inoltre, si è evidenziata una dipendenza del meccanismo dall'angolo di incidenza: in particolare, per bersagli multistrato a incidenza quasi-normale sono state osservate energie maggiori rispetto a incidenza a 30° , al contrario di ciò che è comunemente osservato per quanto riguarda i bersagli convenzionali (paragrafo 1.2 e 1.3). Sono stati anche ottenuti risultati interessanti dallo studio dell'influenza del substrato nei bersagli multistrato: esiste una relazione tra energia massima e spessore del substrato solo nel caso di incidenza non-normale, con un massimo di energia osservato per bersagli *ultrathin*; tuttavia, per substrati micrometrici l'aumento di spessore causa un abbassamento di energia massima meno evidente rispetto ai bersagli convenzionali. Sulla base delle analisi sperimentali effettuate in questo capitolo sarà possibile comprendere più a fondo il processo di accelerazione in bersagli multistrato, al fine di realizzare futuri esperimenti.

Infatti, i risultati ottenuti in questo lavoro di tesi suggeriscono diversi sviluppi futuri. Lo sviluppo di diversi tipi di tecniche di deposizione (ad esempio PLD con impulsi a *fs* e *High Power Impulse Magnetron Sputtering* (HiPIMS)) permetterà di avere un migliore controllo su diversi parametri dei film nanostrutturati (densità, morfologia, dimensione delle nanoparticelle, uniformità della copertura del substrato anche su grandi superfici).

Per rendere ulteriormente più affidabili le misure di densità ottenute tramite la tecnica basata su EDXS, si potrà implementare l'equazione del trasporto degli elettroni agli elementi finiti, in modo da prevenirne le instabilità dovute a campioni multistrato con numeri atomici, e densità molto differenti; il *software* così implementato permetterà di ottenere una relazione tra rapporto di intensità e spessore massico (curva di calibrazione), tenendo

conto di tutti gli effetti dovuti alla struttura multistrato del campione, anche nel caso in cui gli strati siano più di due. D'altra parte, nell'ottica di rendere più veloci le misure di densità di schiume, si potrà costruire un sistema di misura che sia basato sull'attenuazione di un raggio laser, incidente su un substrato riflettente coperto dal film da analizzare. Attraverso lo studio del processo di trasporto della luce nel *coating* nanostrutturato, potrà essere possibile, quindi, determinare la densità; inoltre analizzando il *pattern* di "macchioline" (*spekle*) dello spot laser si potranno ottenere informazioni relative alla morfologia del campione ed alla dimensione delle nanoparticelle (in modo simile alla tecnica *Dynamic Light Scattering*, DLS). Questa nuova tecnica di caratterizzazione potrà portare a risultati migliori, se affiancata dallo sviluppo di modelli numerici, che descrivano efficacemente la struttura frattale delle schiume di Carbonio (ad esempio con modelli di *Diffusion Limited Aggregation*, DLA), e l'interazione della luce laser con quest'ultima, attraverso codici Montecarlo per il trasporto di fotoni. Questo modello sarà inoltre utile per comprendere a fondo il fenomeno di accelerazione di ioni in bersagli multistrato, grazie all'ausilio di simulazioni numeriche *Particle In Cell* (PIC).

Inoltre è opportuna, anche nell'ottica di progettare nuove esperimenti, un'analisi più approfondita sui dati degli ioni raccolti nel 2015, confrontando non solamente l'energia massima ma anche la carica accelerata, l'energia totale, la forma e l'energia media degli spettri. Alla luce delle problematiche sorte nell'analisi preliminare, esposte nel paragrafo 4.5.1, relative allo scarso numero di particelle rivelate, in futuro sarà utile modificare il sistema di diagnostica degli ioni: l'uso di *stack* di RCF potrà permettere di trovare la distribuzione spaziale delle particelle accelerate, in modo da poter variare la posizione degli spettrometri a Parabola Thomson al fine di raccogliere la componente più energetica dello spettro.

Nei futuri esperimenti si potrà indagare, nel meccanismo di accelerazione in bersagli multistrato, l'effetto della trasparenza relativistica indotta. Poiché gli elettroni caldi sembrerebbero essere generati nel volume del film, nel caso in cui esso sia trasparente all'impulso incidente, mentre sono generati nella superficie dello stesso, nel caso in cui sia opaco (effetto Brunel, paragrafo 1.2), ci si aspetterebbe dunque di osservare una transizione da energie elevate a energie inferiori, in corrispondenza del punto in cui il film diventa, in regime relativistico, opaco alla radiazione incidente. Sperimentalmente ciò si potrebbe studiare irraggiando campioni con film di Carbonio con diverso spessore, ma con spessore massico costante che sia pari a quello delle schiume che hanno permesso di ottenere i risultati migliori ($8 \mu\text{m}$ di film con densità $\sim 2n_c$), e misurando le energie massime degli ioni prodotti.

Infine, dal momento che diverse *facility laser* ad alta frequenza di ripetizione (10 Hz) sono in costruzione nel mondo (per quanto riguarda l'Europa si veda ad esempio l'*Extreme Light Infrastructure*, ELI), sarà dunque fondamentale sviluppare soluzioni sperimentali

per alti tassi di ripetizione, necessari per la formazione di fasci di ioni utilizzabili nelle applicazioni industriali e mediche. In questo ambito l'utilizzo di bersagli multistrato potrà giocare un ruolo importante a causa della robustezza dei campioni e della loro provata efficacia nell'aumentare l'energia massima; tuttavia si devono ancora migliorare alcuni aspetti nell'ottica di una produzione di tipo industriale e per questo si potranno sviluppare nuove tecniche di deposizione e caratterizzazione dei film nanostrutturati che permettano una fabbricazione che sia veloce ed economica.

Bibliografia

- [1] Dirk H Sutter, Günter Steinmeyer, Lukas Gallmann, Nicolai Matuschek, François Morier-Genoud, Ursula Keller, V Scheuer, Gregor Angelow, and Theo Tschudi. Semiconductor saturable-absorber mirror-assisted kerr-lens mode-locked titanium:sapphire laser producing pulses in the two-cycle regime. *Optics letters*, 24(9):631–633, 1999.
- [2] Site Centre of Relativistic Laser Science, url: <http://corels.ibs.re.kr>. URL <http://corels.ibs.re.kr>.
- [3] Site Extreme Light Infrastructure, url: <https://eli-laser.eu/>. URL <https://eli-laser.eu/>.
- [4] Site international committee on ultra-high intensity lasers. URL <http://icuil.org>.
- [5] P. Gibbon. *Short Pulse Laser Interactions with Matter: An Introduction*. Imperial College Press, 2005. ISBN 9781860941351. URL <https://books.google.it/books?id=A1JDBqs0KaMC>.
- [6] E L Clark, K Krushelnick, J R Davies, M Zepf, M Tatarakis, F N Beg, A Machacek, P A Norreys, M I K Santala, I Watts, and A E Dangor. Measurements of Energetic Proton Transport through Magnetized Plasma from Intense Laser Interactions with Solids. *Phys. Rev. Lett.*, 84(4):670–673, 2000. doi: 10.1103/PhysRevLett.84.670. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.84.670>.
- [7] A Maksimchuk, S Gu, K Flippo, D Umstadter, and V Yu. Bychenkov. Forward Ion Acceleration in Thin Films Driven by a High-Intensity Laser. *Phys. Rev. Lett.*, 84(18):4108–4111, 2000. doi: 10.1103/PhysRevLett.84.4108. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.84.4108>.
- [8] R A Snavely, M H Key, S P Hatchett, T E Cowan, M Roth, T W Phillips, M A Stoyer, E A Henry, T C Sangster, M S Singh, S C Wilks, A MacKinnon, A Offenberger, D M Pennington, K Yasuike, A B Langdon, B F Lasinski, J Johnson, M D Perry, and E M Campbell. Intense High-Energy Proton Beams from Petawatt-Laser Irradiation of

- Solids. *Phys. Rev. Lett.*, 85(14):2945–2948, 2000. doi: 10.1103/PhysRevLett.85.2945. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.85.2945>.
- [9] Sito Centro Nazionale di Adroterapia Oncologica, url: <https://fondazionecnao.it>. URL <https://eli-laser.eu/>.
- [10] Andrea Macchi, Marco Borghesi, and Matteo Passoni. Ion acceleration by superintense laser-plasma interaction. *Reviews of Modern Physics*, 85(2):751–793, 2013. ISSN 00346861. doi: 10.1103/RevModPhys.85.751.
- [11] S C Wilks, A B Langdon, T E Cowan, M Roth, M Singh, S Hatchett, M H Key, D Pennington, A MacKinnon, and R A Snavely. Energetic proton generation in ultra-intense laser solid interactions. *Physics of Plasmas*, 8(2), 2001.
- [12] R. R. Freeman, D. Batani, S. Baton, M. Key, and R. Stephens. The Generation and Transport of Large Currents in Dense Materials: The Physics of Electron Transport Relative to Fast Ignition. *Fusion Science and Technology*, 49(3):297–315, 2006. URL <http://epubs.ans.org/?a=1150>http://www.ans.org/pubs/journals/fst/a{_}1150.
- [13] M Borghesi, A Bigongiari, S Kar, A Macchi, L Romagnani, P Audebert, J Fuchs, T Toncian, O Willi, S V Bulanov, A J Mackinnon, and J C Gauthier. Laser-driven proton acceleration: source optimization and radiographic applications. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 50(12):124040, 2008. URL <http://stacks.iop.org/0741-3335/50/i=12/a=124040>.
- [14] J E Crow, P L Auer, and J E Allen. The expansion of a plasma into a vacuum. *Journal of Plasma Physics*, 14(01):65–76, 1975. ISSN 1469-7807. doi: 10.1017/S0022377800025538. URL http://journals.cambridge.org/article{_}S0022377800025538.
- [15] M Passoni, L Bertagna, and A Zani. Target normal sheath acceleration: theory, comparison with experiments and future perspectives. *New Journal of Physics*, 12(4):45012, 2010. URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/12/i=4/a=045012>.
- [16] L. Cialfi. Modelli analitici per l’accelerazione di ioni mediante interazione di impulsi laser ultraintensi con bersagli multistrato. Master’s thesis, Scuola di Ingegneria dei Processi Industriali, 2011/2012.
- [17] K. A. Flippo, J. Workman, D. C. Gautier, S. Letzring, R. P. Johnson, and T. Shimada. Scaling laws for energetic ions from the commissioning of the new Los Alamos National Laboratory 200 TW Trident laser. *Review of Scientific Instruments*, 79(10):10–13, 2008. ISSN 00346748. doi: 10.1063/1.2987678.

- [18] P. McKenna, D. Neely, M. Zepf, L. Robson, R.J. Clarke, K.W.D. Ledingham, T. McCanny, P.T. Simpson, F. Lindau, O. Lundh, P. Mora, and C. Wahlstrom. Scaling of proton acceleration driven by petawatt-laser-plasma interactions. *Nature Physics*, 3(1):58–62, 2007. ISSN 1745-2473. doi: 10.1038/nphys476. URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphys476>.
- [19] J. Fuchs, P. Antici, E. D’Humieres, E. Lefebvre, M. Borghesi, E. Brambrink, C. a. Cecchetti, M. Kaluza, V. Malka, M. Manclossi, S. Meyroneinc, P. Mora, J. Schreiber, T. Toncian, H. Pépin, and P. Audebert. Laser-driven proton scaling laws and new paths towards energy increase. *Nature Physics*, 2(1):48–54, 2006. ISSN 1476-0000. doi: 10.1038/nphys199.
- [20] M. Passoni, L. Bertagna, T. Ceccotti, and P. Martin. Proton maximum energy cutoff scaling laws for bulk targets. *AIP Conference Proceedings*, 1153(1), 2009.
- [21] K Ogura, M Nishiuchi, A S Pirozhkov, T Tanimoto, A Sagisaka, T Z Esirkepov, M Kando, T Shizuma, T Hayakawa, H Kiriya, T Shimomura, S Kondo, S Kanazawa, Y Nakai, H Sasao, F Sasao, Y Fukuda, H Sakaki, M Kanasaki, A Yogo, S V Bulanov, P R Bolton, and K Kondo. Proton acceleration to 40 mev using a high intensity, high contrast optical parametric chirped-pulse amplification ti:sapphire hybrid laser system. *Opt. Lett.*, 37(14):2868–2870, Jul 2012. doi: 10.1364/OL.37.002868. URL <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-37-14-2868>.
- [22] D. Neely, P. Foster, A. Robinson, Filip Lindau, Olle Lundh, Anders Persson, Claes-Göran Wahlström, and P. McKenna. Enhanced proton beams from ultrathin targets driven by high contrast laser pulses. 89(2), 2006. ISSN 0003-6951. URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.2220011>.
- [23] J. S. Green, A. P. L. Robinson, N. Booth, D. C. Carroll, R. J. Dance, R. J. Gray, D. A. MacLellan, P. McKenna, C. D. Murphy, D. Rusby, and L. Wilson. High efficiency proton beam generation through target thickness control in femtosecond laser-plasma interactions. *Applied Physics Letters*, 104(21):214101, 2014. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4879641>. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/104/21/10.1063/1.4879641>.
- [24] J. H. Bin, W. J. Ma, H. Y. Wang, M. J. V. Streeter, C. Kreuzer, D. Kiefer, M. Yeung, S. Cousens, P. S. Foster, B. Dromey, X. Q. Yan, R. Ramis, J. Meyer-ter Vehn, M. Zepf, and J. Schreiber. Ion Acceleration Using Relativistic Pulse Shaping in Near-Critical-Density Plasmas. *Physical Review Letters*, 115(6):064801, 2015. ISSN 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.115.064801. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.115.064801>.

- [25] J Metzkes, T Kluge, K Zeil, M Bussmann, S D Kraft, T E Cowan, and U Schramm. Experimental observation of transverse modulations in laser-driven proton beams. *New Journal of Physics*, 16(2):023008, 2014. URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/16/i=2/a=023008>.
- [26] K. Zeil, S. D. Kraft, S. Bock, M. Bussmann, T. E. Cowan, T. Kluge, J. Metzkes, T. Richter, R. Sauerbrey, and U. Schramm. The scaling of proton energies in ultrashort pulse laser plasma acceleration. *New Journal of Physics*, 12(APRIL), 2010. ISSN 13672630. doi: 10.1088/1367-2630/12/4/045015.
- [27] I Jong Kim, Ki Hong Pae, Chul Min Kim, Hyung Taek Kim, Jae Hee Sung, Seong Ku Lee, Tae Jun Yu, Il Woo Choi, Chang Lyoul Lee, Kee Hwan Nam, Peter V Nickles, Tae Moon Jeong, and Jongmin Lee. Transition of proton energy scaling using an ultrathin target irradiated by linearly polarized femtosecond laser pulses. *Physical Review Letters*, 111(16):1–5, 2013. ISSN 00319007. doi: 10.1103/PhysRevLett.111.165003.
- [28] M. Passoni, A. Sgattoni, I. Prencipe, and L. Fedeli. Toward exible laser-driven ion beams: nanostructured double-layer targets. *Physical Review Letters*, 2016.
- [29] D. Margarone, I. J. Kim, J. Psikal, J. Kaufman, T. Mocek, I. W. Choi, L. Stolcova, J. Proska, A. Choukourov, I. Melnichuk, O. Klimo, J. Limpouch, J. H. Sung, S. K. Lee, G. Korn, and T. M. Jeong. Laser-driven high-energy proton beam with homogeneous spatial profile from a nanosphere target. *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams*, 18(7):071304, 2015. ISSN 1098-4402. doi: 10.1103/PhysRevSTAB.18.071304. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevSTAB.18.071304>.
- [30] T. Ceccotti, A. Lévy, H. Popescu, F. Réau, P. D’Oliveira, P. Monot, J. P. Geindre, E. Lefebvre, and Ph. Martin. Proton acceleration with high-intensity ultrahigh-contrast laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 99:185002, Oct 2007. doi: 10.1103/PhysRevLett.99.185002. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.99.185002>.
- [31] T. E. Cowan, J. Fuchs, H. Ruhl, A. Kemp, P. Audebert, M. Roth, R. Stephens, I. Barton, A. Blazevic, E. Brambrink, J. Cobble, J. Fernández, J.-C. Gauthier, M. Geissel, M. Hegelich, J. Kaae, S. Karsch, G. P. Le Sage, S. Letzring, M. Manclossi, S. Meyroneinc, A. Newkirk, H. Pépin, and N. Renard-LeGalloudec. Ultralow emittance, multi-mev proton beams from a laser virtual-cathode plasma accelerator. *Phys. Rev. Lett.*, 92:204801, May 2004. doi: 10.1103/PhysRevLett.92.204801. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.92.204801>.

- [32] M. Roth, A. Blazevic, M. Geissel, T. Schlegel, T. E. Cowan, M. Allen, J. C. Gauthier, P. Audebert, J. Fuchs, J. Meyer-Ter-Vehn, M. Hegelich, S. Karsch, and A. Pukhov. Energetic ions generated by laser pulses: A detailed study on target properties. *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams*, 5(6):31–38, 2002. ISSN 10984402. doi: 10.1103/PhysRevSTAB.5.061301.
- [33] A. J. Mackinnon, Y. Sentoku, P. K. Patel, D. W. Price, S. Hatchett, M. H. Key, C. Andersen, R. Snavely, and R. R. Freeman. Enhancement of proton acceleration by hot-electron recirculation in thin foils irradiated by ultraintense laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 88:215006, May 2002. doi: 10.1103/PhysRevLett.88.215006. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.215006>.
- [34] M. Hegelich, S. Karsch, G. Pretzler, D. Habs, K. Witte, W. Guenther, M. Allen, A. Blazevic, J. Fuchs, J. C. Gauthier, M. Geissel, P. Audebert, T. Cowan, and M. Roth. MeV ion jets from short-pulse-laser interaction with thin foils. *Phys. Rev. Lett.*, 89:085002, Aug 2002. doi: 10.1103/PhysRevLett.89.085002. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.89.085002>.
- [35] H. Schwoerer, S. Pfotenhauer, O. Jäckel, K.-U. Amthor, B. Liesfeld, W. Ziegler, R. Sauerbrey, K. W. D. Ledingham, and T. Esirkepov. Laser-plasma acceleration of quasi-monoenergetic protons from microstructured targets. *Nature*, 439(7075):445–448, 2006. ISSN 0028-0836. doi: 10.1038/nature04492. URL <http://www.nature.com/doi/10.1038/nature04492>.
- [36] S. Buffechoux, J. Psikal, M. Nakatsutsumi, L. Romagnani, A. Andreev, K. Zeil, M. Amin, P. Antici, T. Burris-Mog, A. Compant-La-Fontaine, E. D’Humières, S. Fourmaux, S. Gaillard, F. Gobet, F. Hannachi, S. Kraft, A. Mancic, C. Plaisir, G. Sarri, M. Taxisien, T. Toncian, U. Schramm, M. Tampo, P. Audebert, O. Willi, T. E. Cowan, H. Pépin, V. Tikhonchuk, M. Borghesi, and J. Fuchs. Hot electrons transverse refluxing in ultraintense laser-solid interactions. *Physical Review Letters*, 105(1), 2010. ISSN 00319007. doi: 10.1103/PhysRevLett.105.015005.
- [37] K. Zeil, J. Metzkes, T. Kluge, M. Bussmann, T. E. Cowan, S. D. Kraft, R. Sauerbrey, B. Schmidt, M. Zier, and U. Schramm. Robust energy enhancement of ultrashort pulse laser accelerated protons from reduced mass targets. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 56(8):084004, 2014. ISSN 0741-3335. doi: 10.1088/0741-3335/56/8/084004. URL <http://stacks.iop.org/0741-3335/56/i=8/a=084004?key=crossref.54884079ea1d94300112ede4187b29aa>.
- [38] S. a. Gaillard, T. Kluge, K. a. Flippo, M. Bussmann, B. Gall, T. Lockard, M. Geissel, D. T. Offermann, M. Schollmeier, Y. Sentoku, and T. E. Cowan. Increased laser-accelerated proton energies via direct laser-light-pressure acceleration of electrons in

- microcone targets. *Physics of Plasmas*, 18(2011):0–11, 2011. ISSN 1070664X. doi: 10.1063/1.3575624.
- [39] D. Margarone, O. Klimo, I. J. Kim, J. ProkÅpek, J. Limpouch, T. M. Jeong, T. Moecek, J. Pkal, H. T. Kim, J. Proka, K. H. Nam, L. Tolcová, I. W. Choi, S. K. Lee, J. H. Sung, T. J. Yu, and G. Korn. Laser-driven proton acceleration enhancement by nanostructured foils. *Physical Review Letters*, 109(23):1–5, 2012. ISSN 00319007. doi: 10.1103/PhysRevLett.109.234801.
- [40] A. Henig, D. Kiefer, M. Geissler, S. G. Rykovanov, R. Ramis, R. Hörlein, J. Osterhoff, Zs Major, L. Veisz, S. Karsch, F. Krausz, D. Habs, and J. Schreiber. Laser-driven shock acceleration of ion beams from spherical mass-limited targets. *Physical Review Letters*, 102(9):100–103, 2009. ISSN 00319007. doi: 10.1103/PhysRevLett.102.095002.
- [41] A. Henig, S Steinke, M Schnürer, T Sokollik, R Hörlein, D Kiefer, D Jung, J Schreiber, B M Hegelich, X Q Yan, J Meyer-Ter-Vehn, T Tajima, P V Nickles, W Sandner, and D Habs. Radiation-pressure acceleration of ion beams driven by circularly polarized laser pulses. *Physical Review Letters*, 103(24):1–5, 2009. ISSN 00319007. doi: 10.1103/PhysRevLett.103.245003.
- [42] F Wagner, S Bedacht, V Bagnoud, O Deppert, S Geschwind, R Jaeger, a. Ortner, a. Tebartz, B Zielbauer, D H H Hoffmann, and M Roth. Simultaneous observation of angularly separated laser-driven proton beams accelerated via two different mechanisms. *Physics of Plasmas*, 22(6):63110, 2015. ISSN 1070-664X. doi: 10.1063/1.4922661. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/pop/22/6/10.1063/1.4922661>.
- [43] D. Jung, L. Yin, B. J. Albright, D. C. Gautier, S. Letzring, B. Dromey, M. Yeung, R. Hörlein, R. Shah, S. Palaniyappan, K. Allinger, J. Schreiber, K. J. Bowers, H. C. Wu, J. C. Fernandez, D. Habs, and B. M. Hegelich. Efficient carbon ion beam generation from laser-driven volume acceleration. *New Journal of Physics*, 15:0–10, 2013. ISSN 13672630. doi: 10.1088/1367-2630/15/2/023007.
- [44] M Passoni, A Zani, A Sgattoni, D Dellasega, A Macchi, I Prencipe, V Floquet, P Martin, T V Liseykina, and T Ceccotti. Energetic ions at moderate laser intensities using foam-based multi-layered targets. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 56(4):045001, 2014. ISSN 0741-3335. doi: 10.1088/0741-3335/56/4/045001. URL <http://stacks.iop.org/0741-3335/56/i=4/a=045001?key=crossref.78eb1e2f6d5b3e60c1afd45f5acd156b>.
- [45] I Prencipe, A Sgattoni, D Dellasega, L Fedeli, L Cialfi, Il Woo Choi, I Jong Kim, KA Janulewicz, KF Kakolee, Hwang Woon Lee, et al. Development of foam-based

- layered targets for laser-driven ion beam production. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 58(3):034019, 2016.
- [46] I. Prencipe. *Advanced Materials for Novel Laser-driven Ion Acceleration Schemes*. PhD thesis, Energy and Nuclear Science and Technology, 2015.
- [47] A.V. Rode, S.T. Hyde, E.G. Gamaly, R.G. Elliman, D.R. McKenzie, and S. Bulcock. Structural analysis of a carbon foam formed by high pulse-rate laser ablation. *Applied Physics A*, 69(1):S755–S758. ISSN 1432-0630. doi: 10.1007/s003390051522. URL <http://dx.doi.org/10.1007/s003390051522>.
- [48] A. Zani, D. Dellasega, V. Russo, and M. Passoni. Ultra-low density carbon foams produced by pulsed laser deposition. *Carbon*, 56:358–365, 2013. ISSN 00086223. doi: 10.1016/j.carbon.2013.01.029. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.carbon.2013.01.029>.
- [49] Pagina wikipedia del microscopio elettronico a scansione. URL https://it.wikipedia.org/wiki/Microscopio_elettronico_a_scansione.
- [50] Irene Prencipe, David Dellasega, Alessandro Zani, Daniele Rizzo, and Matteo Passoni. Energy dispersive x-ray spectroscopy for nanostructured thin film density evaluation. *Science and Technology of Advanced Materials*, 16(2):025007, 2015. ISSN 1468-6996. doi: 10.1088/1468-6996/16/2/025007. URL <http://stacks.iop.org/1468-6996/16/i=2/a=025007?key=crossref.654b927373628f8b73a67ebce0b9cda6>.
- [51] J Castaing, R e Descamps. Sur les bases physiques de l’analyse ponctuelle par spectrographie X. *LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM*, 323:315–323, 1967.
- [52] J. D. Packwood, R. H. e Brown. A gaussian expression to describe $\phi(\rho z)$ curves for quantitative electron probe microanalysis. *X-Ray Spectrometry*, 10(3):138–146, 1981. ISSN 1097-4539. doi: 10.1002/xrs.1300100311. URL <http://dx.doi.org/10.1002/xrs.1300100311>.
- [53] Yu G Lavrent’Ev, V N Korolyuk, and L V Usova. Second generation of correction methods in electron probe x-ray microanalysis: Approximation models for emission depth distribution functions. *Journal of Analytical Chemistry*, 59(7):600–616, 2004. ISSN 10619348. doi: 10.1023/B:JANC.0000035269.96076.d2.
- [54] J Ruste. Mass absorption coefficients. *J. Microsc. Spectrosc. Electron*, 4:123, 1979.
- [55] L Hunger, H-J e K uchler. Measurements of the electron backscattering coefficient for quantitative epma in the energy range of 4 to 40 kev. *physica status solidi (a)*, 56(1): K45–K48, 1979.

- [56] J. L. Poucho. X-ray microanalysis of stratified specimens. *Analytica Chimica Acta*, 283(1):81–97, 1993. ISSN 00032670. doi: 10.1016/0003-2670(93)85212-3.
- [57] P. R. Bolton, M. Borghesi, C. Brenner, D. C. Carroll, C. De Martinis, A. Flacco, V. Floquet, J. Fuchs, P. Gallegos, D. Giove, J. S. Green, S. Green, B. Jones, D. Kirby, P. McKenna, D. Neely, F. Nuesslin, R. Prasad, S. Reinhardt, M. Roth, U. Schramm, G. G. Scott, S. Ter-Avetisyan, M. Tolley, G. Turchetti, and J. J. Wilkens. Instrumentation for diagnostics and control of laser-accelerated proton (ion) beams. *Physica Medica*, 30(3):255–270, 2014. ISSN 1724191X. doi: 10.1016/j.ejmp.2013.09.002. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.ejmp.2013.09.002>.
- [58] G F Bastin, H J M Heijligers, and F J J Van Loo. A Further Improvement in the Gaussian $\Phi(\rho z)$ Approach for Matrix Correction in Quantitative Electron Probe Microanalysis. *Scanning*, 8:45–67, 1986.
- [59] Pierre Hovington, Dominique Drouin, and Raynald Gauvin. CASINO: A new Monte Carlo code in C language for electron beam interaction - Part I: Description of the program. *Scanning*, 19(1):1–14, 1997. ISSN 01610457. doi: 10.1002/sca.4950190101. URL <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0031396387&partnerID=tZ0tx3y1>.
- [60] Pierre Hovington, Dominique Drouin, Raynald Gauvin, David C. Joy, and Neal Evens. CASINO: A New Monte Carlo Code in C Language for Electron Beam Interaction—Part I: Description of the Program. *Scanning*, 19(1):1–14, 20–28, 29–35, 1997. ISSN 01610457. doi: 10.1002/sca.4950190103. URL [http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/sca.4950190101/abstract\\$backslash\\$http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0031396387&partnerID=tZ0tx3y1](http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/sca.4950190101/abstract$backslash$http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0031396387&partnerID=tZ0tx3y1).
- [61] H Niedrig. Electron backscattering from thin films. *Journal of Applied Physics*, 53(4):R15, 1982. ISSN 00218979. doi: 10.1063/1.331005. URL <http://link.aip.org/link/?JAPIAU/53/R15/1>.
- [62] H Niedrig. Electron backscattering from thin films. *Journal of Applied Physics*, 53(4):R15, 1982. ISSN 00218979. doi: 10.1063/1.331005. URL <http://link.aip.org/link/?JAPIAU/53/R15/1>.
- [63] D B Brown. Prediction of X-Ray Production and Electron Scattering in Electron-Probe Analysis Using a Transport Equation. *Journal of Applied Physics*, 40(4):1627, 1969. ISSN 00218979. doi: 10.1063/1.1657824. URL <http://link.aip.org/link/?JAP/40/1627/1&Agg=doi>.

- [64] L. P. Smith H. A. Bethe, M. E. Rose. The multiple scattering of electrons. *Proceedings of the American Philosophical Society*, 78(4):573–585, 1938. ISSN 0003049X. URL <http://www.jstor.org/stable/984803>.
- [65] D B Brown and J V Gilfrich. Measurement and Calculation of Absolute X-Ray Intensities. *Journal of Applied Physics*, 42(10):4044–4046, 1971. ISSN 00218979. doi: 10.1063/1.1659722.
- [66] Alfio Quarteroni. *Modellistica numerica per problemi differenziali*, volume 2. Springer Science & Business Media, 2009.
- [67] Dana H Ballard. Generalizing the hough transform to detect arbitrary shapes. *Pattern recognition*, 13(2):111–122, 1981.
- [68] M Roth, E Brambrink, P Audebert, M Basko, A Blazevic, R Clarke, J Cobble, TE Cowan, J Fernandez, J Fuchs, et al. Laser accelerated ions in icf research prospects and experiments. *Plasma physics and controlled fusion*, 47(12B):B841, 2005.