



## Progetto TECHEA - Technologies for Health WorkPackage WP3 – Photonics for Health



### **Rapporto tecnico su specifiche tecniche ed avvio dell'ingegnerizzazione del prototipo di lettore ottico per dosimetria.**

Attività A3.1: rivelatori di radiazione per dosimetria.

DELIVERABLE D3.1.2

*Francesca Bonfigli, Sabina Botti, Stefano Libera, Rosa Maria Montereali, Enrico Nichelatti, Valentina Nigro, Massimo Piccinini, Maria Aurora Vincenti*

Laboratorio FSN-TECFIS-MNF, ENEA

## INDICE

<b>1. PRESENTAZIONE SINTETICA DELLE ATTIVITÀ E DEI RISULTATI CONSEGUITI.....</b>	<b>5</b>
1.1. SINTESI DELLE ATTIVITÀ SVOLTE E DEI RISULTATI CONSEGUITI .....	5
<b>2. PROTOTIPI DI RIVELATORI A FILM SOTTILE DI LiF SU SUBSTRATI RIFLETTENTI: REALIZZAZIONE E SPECIFICHE TECNICHE .....</b>	<b>7</b>
<b>3. MICROSCOPIO A FLUORESCENZA CONVENZIONALE E CONFOCALE LASER: RISPOSTA RPL AMPLIFICATA DI RIVELATORI A FILM SOTTILE DI LiF IRRAGGIATI CON RAGGI-X MOLLII.....</b>	<b>8</b>
<b>4. MICROSCOPIO CONFOCALE RAMAN: IMAGING DI CRISTALLI DI LiF IRRAGGIATI CON RAGGI-X DURI .....</b>	<b>9</b>
<b>5. MICROSCOPIA E SPETTROSCOPIA OTTICA: RISPOSTA RPL AMPLIFICATA DI RIVELATORI A FILM SOTTILE DI LiF IRRAGGIATI CON PROTONI A 27 MeV .....</b>	<b>9</b>
<b>6. IRRAGGIAMENTO DI RIVELATORI A FILM SOTTILE DI LiF CON PROTONI A 35 MeV E RISPOSTA OTTICA MEDIANTE MICROSCOPIO A FLUORESCENZA.....</b>	<b>10</b>
<b>7. CRISTALLI DI LiF IRRAGGIATI CON PROTONI: MISURA DEL RANGE DINAMICO MEDIANTE SPETTROSCOPIA OTTICA INDOTTA DA LASER.....</b>	<b>11</b>
<b>8. CRISTALLI DI LiF IRRAGGIATI CON PROTONI A DOSI CLINICHE: RISPOSTA MEDIANTE SPETTROSCOPIA OTTICA INDOTTA DA LASER .....</b>	<b>12</b>
<b>9. CRISTALLI LiF IRRAGGIATI GAMMA A DOSI CLINICHE: STUDIO DELLA RISPOSTA SPETTRALE INDOTTA DA LASER.....</b>	<b>12</b>
<b>10. CRISTALLI LiF IRRAGGIATI GAMMA A DOSI CLINICHE: RISULTATI PRELIMINARI DI STABILITÀ NEL TEMPO .....</b>	<b>13</b>
<b>11. PROTOTIPO DI LETTORE OTTICO PER DOSIMETRIA: PROVE PRELIMINARI SU BANCO OTTICO .....</b>	<b>13</b>
<b>12. PRODOTTI DELLA RICERCA .....</b>	<b>14</b>
12.1. PUBBLICAZIONI .....	14
12.2. RAPPORTI TECNICI .....	14
12.3. PARTECIPAZIONI A CONFERENZE.....	14

**APPENDICI\***

<b><u>2.1. CARATTERIZZAZIONE MORFOLOGICA E SPETTROFOTOMETRICA DI FILM DI LiF.....</u></b>	<b><u>12</u></b>
<b><u>2.2. INDAGINE TECNICA SU SUBSTRATI COMMERCIALI RIFLETTENTI .....</u></b>	<b><u>19</u></b>
<b><u>3. MISURE DI AMPLIFICAZIONE DEL SEGNALE DI FOTOLUMINESCENZA IN RIVELATORI A FILM DI LiF IRRAGGIATI CON RAGGI X MOLI MEDIANTE MICROSCOPIA CONVENZIONALE E CONFOCALE.....</u></b>	<b><u>21</u></b>
<b><u>4. STUDIO DI CRISTALLI DI LiF IRRAGGIATI CON RAGGI X DURI MEDIANTE SPETTROSCOPIA RAMAN CONFOCALE.....</u></b>	<b><u>27</u></b>
<b><u>5. AMPLIFICAZIONE DEL SEGNALE DI FOTOLUMINESCENZA IN RIVELATORI A FILM DI LiF IRRAGGIATI CON PROTONI A 27 MeV MEDIANTE SPETTROFLUORIMETRIA E MICROSCOPIA CONFOCALE .....</u></b>	<b><u>33</u></b>
<b><u>6. AMPLIFICAZIONE DEL SEGNALE DI FOTOLUMINESCENZA IN RIVELATORI A FILM DI LiF IRRAGGIATI CON PROTONI A 35 MeV MEDIANTE MICROSCOPIA CONVENZIONALE.....</u></b>	<b><u>36</u></b>
<b><u>7.1. STIMA DEL RANGE DINAMICO DI RIVELATORI BASATI SU CRISTALLI DI LiF MEDIANTE SPETTROSCOPIA INDOTTA DA LASER.....</u></b>	<b><u>39</u></b>
<b><u>7.2. APPARATO SPERIMENTALE PER LE MISURE SPETTROSCOPICHE INDOTTE DA LASER .....</u></b>	<b><u>42</u></b>
<b><u>8.1. SCHEMA PER GLI IRRAGGIAMENTI CON FASCI DI PROTONI A DOSI CLINICHE .....</u></b>	<b><u>43</u></b>
<b><u>8.2. STUDIO DELLA RISPOSTA IN FOTOLUMINESCENZA DI RIVELATORI BASATI SU CRISTALLI DI LiF IRRAGGIATI CON FASCI DI PROTONI A DOSI CLINICHE.....</u></b>	<b><u>44</u></b>
<b><u>9. STUDIO DELLA RISPOSTA IN FOTOLUMINESCENZA DI RIVELATORI BASATI SU CRISTALLI DI LiF IRRAGGIATI GAMMA A DOSI CLINICHE .....</u></b>	<b><u>46</u></b>
<b><u>10. STABILITÀ NEL TEMPO DELLA RISPOSTA IN FOTOLUMINESCENZA DI RIVELATORI BASATI SU CRISTALLI DI LiF IRRAGGIATI GAMMA A DOSI CLINICHE: MISURE PRELIMINARI.....</u></b>	<b><u>49</u></b>
<b><u>11. SCHEMA PROTOTIPO PER LA LETTURA OTTICA DEI DOSIMETRI DI LiF: MISURE PRELIMINARI.....</u></b>	<b><u>50</u></b>

**\*Le appendici non sono riportate in questo documento in quanto contengono materiale suscettibile di pubblicazione.**

**INDICE DELLE FIGURE**

Figura 1 - Schema (sinistra) e fotografia (destra) di un prototipo di rivelatore di radiazione basato su film di LiF depositato su un substrato riflettente ottenuto crescendo su vetro un film di alluminio di spessore pari a 200 nm. .... 8

## 1. Presentazione sintetica delle attività e dei risultati conseguiti

Nell'ambito del Progetto TECHEA, l'attività del **Workpackage WP3, Photonics for Health**, riguarda lo sviluppo di sistemi di dosimetria clinica e di sensori indossabili per il controllo di irraggiamenti e dei pazienti durante gli stessi e le diagnostiche associate, basati su due classi di sensori a lettura completamente ottica per applicazioni bio-medicali:

- rivelatori di radiazione a lettura ottica di fotoluminescenza basati su fluoruro di litio per dosimetria clinica ed imaging nei trattamenti di radioterapia;
- sensori di Bragg in fibra ottica (FBG) per misure fisiche distribuite sia per attività interventistica (termo ablazione di neoplasie, etc) sia per analisi biometriche e funzionali (respirazione, attività cardiaca, etc.).

Obiettivo della Linea **A3.1** è lo sviluppo di rivelatori di radiazione innovativi per dosimetria clinica basati sulla lettura ottica della fluorescenza del fluoruro di litio, con realizzazione di dosimetri a film sottile e di un prototipo di lettore ottico dedicato per la misura della dose immagazzinata nei rivelatori di LiF e della distribuzione spaziale 2D e 3D nei trattamenti di adroterapia.

Si riportano di seguito una sintesi delle attività svolte e dei risultati conseguiti nel secondo anno di TECHEA, che verranno presentati e discussi dettagliatamente nel rapporto e nelle appendici.

Segue l'elenco delle pubblicazioni.

Sebbene non sia stato possibile effettuare una parte consistente della attività di sperimentazione prevista per l'ingegnerizzazione, a seguito dell'emergenza COVID e dell'accesso contingentato ai laboratori, alcuni obiettivi sono stati totalmente/o parzialmente raggiunti, come dettagliato di seguito.

### 1.1 Sintesi delle attività svolte e dei risultati conseguiti

- Attività di sviluppo tecnologico che porti alla realizzazione dei prototipi ingegnerizzati. Indagine su substrati riflettenti commerciali in alternativa a film di alluminio evaporati termicamente su vetro e Si, per ridurre costi e tempi di realizzazione ed ottenere maggiore riproducibilità delle proprietà dei dosimetri a film sottile.
- Completamento e messa a punto degli allestimenti.

La strumentazione per imaging e spettroscopia ottica acquisita e/o implementata nel primo anno è stata utilizzata con successo su campioni di fluoruro di litio. Lo spettrometro micro-Raman confocale ha permesso per la prima volta la mappatura Raman di cristalli di LiF irraggiati con raggi-X duri. Il microscopio confocale laser, usato come lettore della risposta di rivelatori a film sottile di LiF cresciuti su substrati riflettenti, ha evidenziato una

maggior amplificazione, fino ad un ordine di grandezza, rispetto alla lettura con microscopio a fluorescenza convenzionale in particolari condizioni di spessore e colorazione (Brevetto ENEA n. 773).

- Ingegnerizzazione del rivelatore di radiazione

Caratterizzazione morfologica e spettrofotometrica di rivelatori a film sottile di fluoruro di litio di spessore crescente depositati per evaporazione termica su vetro, silicio e substrati compositi riflettenti, ottenuti crescendo film di alluminio su vetro e silicio irraggiati con protoni da 35 MeV prodotti dall'acceleratore TOP-IMPLART. Mediante microscopio a fluorescenza convenzionale, in presenza di alluminio è stata misurata un'amplificazione della risposta fino ad un fattore 4, a seconda dello spessore del film e del substrato, rispetto ai film depositati in assenza di alluminio.

- Ingegnerizzazione del lettore ottico per dosimetria, mediante misure sistematiche di lettura della risposta ottica dei rivelatori in differenti configurazioni/geometrie.

È stata ottenuta una stima del range dinamico (rapporto tra massima intensità di fotoluminescenza e rumore di fondo), mediante misure sistematiche ed analisi della risposta spettrale indotta da laser, di cristalli di LiF irraggiati con protoni, che è risultato pari a ~110 dB in corrispondenza del picco di emissione dei centri  $F_2$ , nel rosso, un valore molto elevato, paragonabile a quello dei migliori rivelatori elettronici in commercio.

E' stata misurata la risposta spettrale indotta da laser di cristalli LiF irraggiati gamma a dosi cliniche (1-20 Gy) presso la sorgente  $^{60}\text{Co}$  di INMRI (ENEA Casaccia), la cui analisi ha permesso di determinare la linearità dell'intensità di fotoluminescenza dovuta a ognuna delle bande di emissione dei centri  $F_2$  ed  $F_3^+$  in funzione della dose e, a dose fissata, la sub-linearità per i soli centri  $F_3^+$  in funzione della potenza del laser, tentativamente attribuibile alla presenza di centri legati ad impurezze spettralmente contigui. L'intensità del picco di fotoluminescenza dei centri  $F_2$  è risultata confrontabile, entro il 2%, a quella di un set di cristalli irraggiati 39 mesi prima nelle stesse condizioni, un risultato preliminare incoraggiante per quanto riguarda la stabilità nel tempo. Sono stati irraggiati a dosi cliniche (0.5 a 50 Gy) cristalli di LiF mediante protoni di energia nominale 35 MeV prodotti dall'acceleratore TOP-IMPLART. La misura degli spettri di fotoluminescenza indotta da laser ha permesso di determinare la linearità della risposta per i centri  $F_2$  in funzione della dose ed avviare il confronto con quella dei centri prodotti per irraggiamento con sorgente  $^{60}\text{Co}$  a parità di dose.

È stato avviato l'allestimento di un primo prototipo di lettore ottico per dosimetri di LiF, costituito da laser compatto a stato solido, modulato elettronicamente, che eccita la fotoluminescenza, spettralmente integrata sull'emissione rossa dei centri  $F_2$  mediante opportuni filtri e raccolta con una lente da un fotomoltiplicatore; il segnale è amplificato da un sistema basato su lock-in fase di realizzazione e test presso ENEA Frascati.

## **2. Prototipi di rivelatori a film sottile di LiF su substrati riflettenti: realizzazione e specifiche tecniche**

Prototipi di rivelatori basati su film sottili di fluoruro di litio (LiF) sono stati cresciuti per evaporazione termica nel laboratorio Stato Solido: evaporazione film per fotonica, FSN-TECFIS-MNF, su substrati trasparenti, quali vetro e Suprasil® e riflettenti, come Si(100) e film di Al depositati per evaporazione termica su vetro e su Si(100). Durante le deposizioni di LiF, effettuate in camera da vuoto ad una pressione inferiore a  $10^{-3}$  Pa, la temperatura dei substrati,  $T_s$ , è stata mantenuta a 300 °C, il rate di deposizione a 1 nm/s mentre lo spessore del film di LiF è stato impostato con valori differenti per ciascuna deposizione. I film sono identificati come NLiFJ n°K, dove J è il numero cronologico dell'evaporazione e K, compreso fra 1 e 30, indica la posizione del substrato sulla piastra-portacampioni presente nella camera da vuoto. Lo spessore dei film di LiF è stato misurato dopo la crescita con un profilometro a stilo (KLA-Tencor, modello P-1) presso il laboratorio DTE-FSD-TEF del C.R. Casaccia.

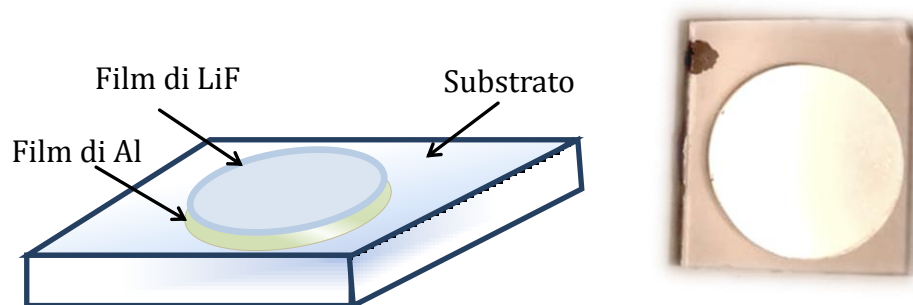
Dai principali parametri di crescita, quali la natura del substrato, la sua temperatura durante la deposizione, il rate di deposizione, lo spessore del film, dipendono le proprietà ottiche, morfologiche e strutturali dei film. Anche l'efficienza di formazione dei centri di colore primari ed aggregati, indotti dall'irraggiamento con radiazioni ionizzanti, e quindi la risposta di fotoluminescenza dei rivelatori, è dipendente dalle condizioni di crescita.

I rivelatori basati su film di LiF sono caratterizzati da un'elevata versatilità in quanto è possibile scegliere il substrato e definire la geometria e le dimensioni del rivelatore a seconda delle necessità dell'esperimento che si vuole realizzare.

Le caratterizzazioni morfologica e spettrofotometrica di rivelatori basati su film di LiF cresciuti su differenti substrati sono mostrate nell'Appendici 2.1\*. L'Appendice 2.2\* riporta un'indagine tecnica su substrati commerciali, riflettenti e flessibili, con proprietà potenzialmente interessanti

in alternativa a film di alluminio evaporati termicamente su vetro e Si, per ridurre costi e tempi di realizzazione ed ottenere maggiore riproducibilità delle proprietà dei dosimetri a film sottile.

Figura 2.1 mostra un prototipo di rivelatore basato su film di LiF con una struttura bilayer col quale ci si aspetta di osservare un'amplificazione della risposta di fotoluminescenza grazie alla presenza del film di alluminio.



**Figura 1 – Schema (sinistra) e fotografia (destra) di un prototipo di rivelatore di radiazione basato su film di LiF depositato su un substrato riflettente ottenuto crescendo su vetro un film di alluminio di spessore pari a 200 nm.**

### **3. Microscopio a fluorescenza convenzionale e confocale laser: risposta RPL amplificata di rivelatori a film sottile di LiF irraggiati con raggi-X molli**

Allo scopo di studiare l'effetto di substrati riflettenti sull'amplificazione del segnale di fotoluminescenza di rivelatori basati su film di LiF, sono stati analizzati film di LiF di spessore nominale 1  $\mu\text{m}$  e 120 nm cresciuti su quattro diversi substrati (vetro, silicio, film di alluminio spesso 200 nm depositato su silicio e su vetro) ed irraggiati con raggi X molli generati da una sorgente laser plasma presso l'Università di Roma Tor Vergata (Dip. Ingegneria Industriale).

Secondo irraggiamenti preliminari di studio dell'uniformità spaziale dell'irraggiamento della sorgente X, i film di LiF irraggiati nelle stesse condizioni, i cui segnali di fotoluminescenza sono direttamente confrontabili, sono le coppie: (NLiF79 n15-NLiF79 n10), (NLiF79 n18-NLiF79 n12), (NLiF81 n7-NLiF81 n14), (NLiF81 n10-NLiF81 n17). Questo studio permette quindi di confrontare i segnali di fotoluminescenza di film cresciuti su substrati di vetro (non riflettenti alle lunghezze d'onda di interesse per le proprietà di assorbimento ottico ed di fotoluminescenza dei centri di colore indotti da radiazione nel LiF) rispetto a quelli di film cresciuti su substrati riflettenti costituiti da film di alluminio (200 nm su vetro) ed inoltre di confrontare i segnali di fotoluminescenza di film



di LiF cresciuti su substrati riflettenti di silicio e di alluminio (200 nm su silicio). I risultati della caratterizzazione dei campioni mediante microscopia confocale sono mostrati in Appendice 3\*.

#### **4. Microscopio confocale Raman: imaging di cristalli di LiF irraggiati con raggi-X duri**

La spettroscopia Raman è una tecnica non distruttiva che permette una completa caratterizzazione strutturale del campione in esame sfruttando la diffusione anelastica della luce laser che interagisce con il materiale, trasferendo in quanti discreti l'energia dal campo di radiazione alle vibrazioni reticolari. La radiazione diffusa viene raccolta ed analizzata dallo spettrometro Raman. L'introduzione di un difetto, come i centri colore, distrugge la simmetria traslazionale del reticolo degli alogenuri alcalini, permettendo l'osservazione dello spettro Raman anche al primo ordine. Pertanto la spettroscopia Raman è una sorgente di informazioni sull'interazione del centro di colore con le vibrazioni reticolari.

Per la prima volta sono state eseguite le analisi mediante spettroscopia Raman confocale su un cristallo di LiF commerciale precedentemente irraggiato con un fascio broadband di raggi X (energia=2-40 keV) presso la Beamline TOMO-TOPO del Sincrotrone ANKA-Karlsruhe (D), acquisendo e confrontando gli spettri Raman, misurati a temperatura ambiente, fuori e dentro aree colorate di dimensioni micrometriche. Lo spettrometro Raman confocale acquisito durante il primo anno del progetto TECHEA dal laboratorio FSN-TECFIS-MNF permette inoltre di ottenere la completezza d'informazione di uno spettro Raman per ogni pixel di una griglia preselezionata sulla superficie del campione (mappa 2D) e nel volume (mappa 3D). I principali risultati ottenuti finora sono presentati e discussi dettagliatamente nell'Appendice 4\*.

#### **5. Microscopia e spettroscopia ottica: risposta RPL amplificata di rivelatori a film sottile di LiF irraggiati con protoni a 27 MeV**

Rivelatori basati su film di LiF cresciuti su vetro e Si(100) sono utilizzati per la caratterizzazione avanzata (distribuzione trasversale di fascio e di picco di Bragg) dei fasci di protoni prodotti dall'acceleratore lineare modulare di protoni in fase di sviluppo presso ENEA C.R. Frascati, nell'ambito del Progetto TOP-IMPLART (Regione Lazio).

Per fasci di protoni di energia nominale 27 MeV, per i quali il LET (Linear Energy Transfer) è pari a 4.5 keV/ $\mu\text{m}$ , l'utilizzo di rivelatori cresciuti su substrato di vetro necessita irraggiamenti a dosi superiori a  $10^3$  Gy. La possibilità di utilizzare rivelatori basati su film di LiF depositati su Si(100) (o anche altri substrati riflettenti come l'alluminio), in virtù della riflettività di questo materiale alle lunghezze d'onda ottiche corrispondenti all'assorbimento ed all'emissione di fluorescenza dei centri di colore  $F_2$  ed  $F_3^+$  prodotti dall'irraggiamento, comporta un'amplificazione del segnale di fluorescenza e quindi la possibilità di contenere i tempi di irraggiamento e la dose somministrata. L'amplificazione del segnale di fluorescenza è dovuta oltre alla riflettività del substrato, che consente di acquisire una parte della luce emessa dai centri di colore in direzione opposta a quella di osservazione, al fatto che il segnale riflesso dal substrato può interferire costruttivamente con quello emesso direttamente, per opportuni valori dello spessore del film in quanto la struttura planare costituita dal film di LiF colorato sul substrato riflettente può costituire una mezza microcavità.

Allo scopo di studiare l'amplificazione del segnale di fotoluminescenza emesso dai centri di colore indotti dall'irraggiamento dovuta alla natura del substrato, rivelatori basati su film di LiF di tre differenti spessori, 660, 1160 e 1450 nm, depositati per evaporazione termica su substrati di vetro e silicio (temperatura del substrato  $T_s = 300$  °C), sono stati irraggiati in aria con fasci di protoni di energia nominale pari a 27 MeV alle dosi di  $4.2 \times 10^3$  e  $1.7 \times 10^5$  Gy. Gli irraggiamenti sono stati effettuati ponendo i rivelatori perpendicolarmente alla direzione del fascio di protoni in modo da immagazzinare la "mappa a centri di colore" della sua distribuzione trasversale.

Dopo l'irraggiamento i rivelatori sono stati caratterizzati mediante lo spettrofluorimetro Fluorolog-3 Modello FL3-11 della Horiba Scientific e il microscopio ottico in fluorescenza Nikon Eclipse 80-i C1 in modalità confocale a scansione laser. I risultati delle caratterizzazioni sono mostrati in Appendice 5.1. È stata misurata un'amplificazione di valore compreso fra circa 1.5 e 3.9 che dipende dallo spessore del film di LiF e dalla dose di irraggiamento. I dettagli delle elaborazioni effettuate sono riportati in Appendice 5\*.

## **6. Irraggiamento di rivelatori a film sottile di LiF con protoni a 35 MeV e risposta ottica mediante microscopio a fluorescenza**

Film policristallini di LiF di diversi spessori minori di 1  $\mu\text{m}$ , cresciuti per evaporazione termica su substrati semplici (vetro e Si(100)) e composti (film di alluminio cresciuti su vetro e su Si(100)),

sono stati irraggiati presso l'acceleratore TOP-IMPLART con protoni di energia nominale 35 MeV e dose pari a  $10^4$  Gy, uguale per tutti i campioni, posizionati perpendicolarmente al fascio sulla flangia di uscita dell'acceleratore. La risposta in radiofotoluminescenza (RFL) dei film di LiF dopo l'irraggiamento è stata caratterizzata attraverso microscopia ottica in fluorescenza integrando il valore del livello di grigio di tutti i pixel delle immagini degli spot luminescenti, ovvero dell'impronta lasciata dal fascio nei film per la formazione dei centri di colore  $F_2$  ed  $F_3^+$ . È stata misurata un'amplificazione, fino ad un fattore 4, della risposta in RFL nei film cresciuti su alluminio, rispetto ai film depositati in assenza di alluminio, sia su vetro che su silicio. Tutti i risultati sono riportati nell'Appendice 6\*.

## **7. Cristalli di LiF irraggiati con protoni: misura del range dinamico mediante spettroscopia ottica indotta da laser**

Il range dinamico è il rapporto tra il valore massimo e il valore minimo che una certa grandezza fisica può assumere e viene solitamente misurato in dB utilizzando la seguente formula:

. Esso costituisce una caratteristica importante per un dispositivo luminoso, quale un rivelatore a fluorescenza, perché rappresenta una misura del massimo contrasto dell'intensità luminosa che il rivelatore può offrire in fase di lettura. Si può pertanto capire come, nel caso di rivelatori per radiazione ionizzante, il range dinamico sia anche l'intervallo massimo di dose assorbita che può essere registrata senza che parte dell'informazione venga persa o per saturazione del rivelatore (dose troppo alta) o per mascheramento dovuto al rumore di fondo intrinseco (dose troppo bassa). Per stimare il range dinamico di cristalli di LiF utilizzati come rivelatori di dose depositata nel materiale, sono stati eseguiti irraggiamenti di cristalli nominalmente puri con protoni di energia nominale 3 MeV, presso l'acceleratore lineare in fase di realizzazione presso il centro ENEA di Frascati per il progetto TOP-IMPLART finanziato dalla Regione Lazio. È risultato che il range dinamico massimo ottenibile è posizionato alle lunghezze d'onda di emissione dei centri  $F_2$  e che il suo valore è pari a circa 110 dB, pertanto la lettura della RFL da un rivelatore di questo tipo è ottimizzata se avviene in un intervallo spettrale coincidente con la banda di emissione dei centri  $F_2$ , sia per la maggior intensità di banda rispetto agli  $F_3^+$  che per il più alto range dinamico disponibile. Questi risultati sono riportati dettagliatamente nell'Appendice 7.1\*.

## **8. Cristalli di LiF irraggiati con protoni a dosi cliniche: risposta mediante spettroscopia ottica indotta da laser**

Sono stati eseguiti dei test d'irraggiamento con protoni di rivelatori basati su LiF in forma di cristallo, irraggiando integralmente cristalli nominalmente puri con facce lucidate di dimensione  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  e spessore 1 mm, prodotti dalla ditta Macrooptica Ltd. (Russia). L'irraggiamento dei cristalli *as received* è stato eseguito con protoni di energia nominale 35 MeV prodotti dall'acceleratore TOP-IMPLART presso ENEA Frascati (vedi Appendice 8.1\*). Sono state effettuate due distinte sessioni di irraggiamento, nella prima erogando dosi nell'intervallo da 0.5 a 48 Gy e nella seconda erogando dosi nell'intervallo da 1 a 18 Gy. L'analisi spettroscopica del segnale di radiofotoluminescenza (RFL) dei centri di colore, generati nel LiF dalle radiazioni ionizzanti, è stata fatta sul banco ottico allestito in laboratorio (vedi appendice 7.2\*). La misura degli spettri ha confermato la formazione nei cristalli dei centri  $F_2$  ed  $F_3^+$  e, considerando l'intensità della RFL sul picco di emissione dei centri  $F_2$ , essa è risultata lineare in funzione della dose per entrambi i set di cristalli irraggiati nelle due sessioni. La risposta in RFL è stata confrontata con quella dei cristalli irraggiati con la sorgente di calibrazione primaria di  $^{60}\text{Co}$  installata presso ENEA Casaccia e sono risultate comparabili entro il 4%. I risultati sono riportati in dettaglio nell'Appendice 8.2\*.

## **9. Cristalli LiF irraggiati gamma a dosi cliniche: studio della risposta spettrale indotta da laser**

In vista del possibile impiego di rivelatori basati sulla radiofotoluminescenza (RFL) da centri di colore nel LiF per la rivelazione di dosi cliniche, è importante studiare la risposta spettrale del materiale in termini di intensità di RFL alle basse dosi, per valutarne in particolare la sensibilità e la linearità. A tale scopo, è stato eseguito uno studio sistematico di irraggiamento di cristalli di LiF con raggi gamma prodotti dalla sorgente di calibrazione primaria  $^{60}\text{Co}$  presso l'INMRI al centro ENEA Casaccia, alle dosi equivalenti in acqua di 1, 2, 5, 10 e 20 Gy. Gli spettri di RFL sono stati misurati al banco ottico allestito in laboratorio (vedi appendice 7.2) eccitando i campioni con un laser Cobolt in continua con potenze nominali di 5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80 mW. Inoltre, per studiare l'evoluzione temporale degli spettri, è stato acquisito uno spettro ogni 0.1 s con un tempo d'integrazione di 0.1 s per 10 s, per ogni potenza del laser di pompa. L'analisi delle aree delle bande di emissione dei centri  $F_2$  ed  $F_3^+$  ha mostrato che un tempo di pompaggio ottico di 10 s

sembra essere sufficiente a ottenere un regime stabile per l'emissione di RFL dei centri  $F_2$  ed  $F_3^+$  e la dipendenza dell'area delle bande di emissione dalla dose è caratterizzata da una buona linearità fino alla dose più alta. Lo studio dell'andamento dell'area delle bande in funzione della potenza del laser ha permesso di dedurre informazioni interessanti sul meccanismo di produzione dei centri e di lettura della RFL da essi emessa. In particolare, è stata notata una anomala non-linearità riguardante l'emissione dei centri  $F_3^+$  che risulta perturbata dalla presenza di una vicina banda di emissione riconducibile all'emissione da parte di centri di colore non identificati univocamente in letteratura, probabilmente legati alla presenza di impurezze. Tale perturbazione della banda  $F_3^+$  e la maggiore intensità di emissione dei centri  $F_2$  ci fanno concludere che è più vantaggioso concentrare la lettura ottica di RFL da rivelatori basati sul LiF nella zona spettrale di emissione dei centri  $F_2$ . Tutti i risultati sono riportati dettagliatamente nell'Appendice 9\*.

## **10. Cristalli LiF irraggiati gamma a dosi cliniche: misure preliminari di stabilità nel tempo**

Una caratteristica notevole dei centri di colore luminescenti prodotti nel LiF da radiazioni ionizzanti è la loro stabilità nel tempo. Questo permette, da un lato, di poter leggere più volte l'informazione sulla dose, ricavata dall'intensità di RFL, in modo riproducibile senza danneggiare il campione e, dall'altro, la possibilità di mantenere tale informazione inalterata nel tempo quando ciò fosse necessario. Tale importante caratteristica è stata confermata in cristalli di LiF irraggiati a dosi di interesse clinico tramite un test preliminare eseguito su due set di campioni, irraggiati nelle stesse condizioni nell'intervallo di dose da 1 a 20 Gy, a distanza di 39 mesi, con la sorgente di calibrazione primaria  $^{60}\text{Co}$  presso INMRI in ENEA Casaccia. I dettagli sperimentali ed i risultati sono discussi nell'Appendice 10\*.

## **11. Prototipo di lettore ottico per dosimetria: prove preliminari su banco ottico**

È stato allestito un primo prototipo per la lettura ottica dei dosimetri di LiF, costituito da un laser a 445 nm, che eccita simultaneamente la radiofotoluminescenza (RFL) dei centri di colore  $F_2$  ed  $F_3^+$ . Dagli studi effettuati delle caratteristiche della RFL di entrambi i centri, riportati nelle precedenti sezioni 7,8,9,10, risulta più vantaggioso, per stimare la dose assorbita, l'utilizzo del segnale di RFL dei soli centri  $F_2$  rispetto ai centri  $F_3^+$ , poiché i primi si sono mostrati migliori in termini di stabilità,

riproducibilità di lettura e rapporto segnale rumore. Nel prototipo di lettore, la RFL dei centri di colore eccitata dal laser viene quindi filtrata otticamente per isolare l'emissione dei centri  $F_2$ , che viene raccolta tramite una lente da un tubo fotomoltiplicatore; il segnale è poi amplificato da un sistema basato sulla tecnica lock-in, in fase di realizzazione e test in collaborazione con il laboratorio FSN-TECFIS-DIM in ENEA Frascati. Test preliminari sono stati eseguiti mediante misure di RFL su un set di cristalli di LiF irraggiato presso la sorgente  $^{60}\text{Co}$ , descritto nella precedente sezione 10; i risultati hanno confermato la dipendenza lineare del segnale di RFL in funzione della dose. I dettagli tecnici del prototipo e le misure di test sono riportati nell'appendice 11\*.

\*L'appendice non è riportata in quanto contiene materiale suscettibile di pubblicazione.

## 12. Prodotti della ricerca

### 12.1 Pubblicazioni

**M.A. Vincenti, M. Leoncini, S. Libera, E. Nichelatti, M. Piccinini, A. Ampollini, L. Picardi, C. Ronsivalle, A. Rufoloni, R.M. Montereali**, *Growth and Optical Characterisation of Lithium Fluoride Films for Proton Beam Detectors*, Materials Research Proceedings, Vol. 16, pp 56-64, 2020, DOI: <https://doi.org/10.21741/9781644900710-7>, Part of the book on [Photonics and Photoactive Materials](#) (OPEN ACCESS)

### 12.2 Rapporti Tecnici

**R.M. Montereali, F. Bonfigli, R.F. Khan, M. Piccinini, M. Pimpinella, M.A. Vincenti, V. De Coste and J.E. Villarreal-Barajas**, *Radiophotoluminescence dosimetry using visible emitting colour centres in pure LiF crystals: the clinical dose challenge in radiotherapy*, Report RT/2020/5/ENEA, 2020, ISSN/2499-5347.

### 12.3 Partecipazioni a Conferenze

**F. Bonfigli, M.A. Vincenti, V. Nigro, E. Nichelatti, M. Piccinini, P. Gaudio, R. Rossi, R.M. Montereali**, *Enhanced photoluminescence of radiation-induced colour centres in LiF film detectors*, Italian Conference on Optics and Photonics (ICOP2020), Parma, September 9-11, 2020, online.

**M. Piccinini, E. Nichelatti, A. Ampollini, G. Bazzano, C. De Angelis, S. Della Monaca, P. Nenzi, L. Picardi, C. Ronsivalle, V. Surrenti, E. Trinca, M. Vadrucci, M.A. Vincenti, R.M. Montereali,** *Risposta in funzione della dose di difetti puntiformi in cristalli di fluoruro di litio irraggiati con protoni a 35 MeV e ricostruzione della curva di Bragg a dosi cliniche*, 106° Congresso Nazionale della Società Italiana di Fisica, 14-18 settembre 2020, online, atticon12413, pag. 230.

**M.A. Vincenti, M. Leoncini, S. Libera, E. Nichelatti, M. Piccinini, A. Ampollini, L. Picardi, C. Ronsivalle, A. Rufoloni, R.M. Montereali,** *Crescita e caratterizzazione ottica di film di fluoruro di litio per rivelatori di protoni basati su radiofotoluminescenza*, 106° Congresso Nazionale della Società Italiana di Fisica, 14-18 settembre 2020, online, atticon12745, ISBN: 978-88-7438-123-4, pag. 258.

**V. Nigro, R.M. Montereali, E. Nichelatti, M.A. Vincenti,** *<sup>6</sup>Li-enriched LiF films grown by thermal evaporation for neutron detection*, 106° Congresso Nazionale della Società Italiana di Fisica, 14-18 settembre 2020, online, atticon12669, ISBN: 978-88-7438-123-4, pag.271.

