

E. NICHELATTI

Dipartimento Nucleare
Divisione Tecnologie Fisiche e Sicurezza
Laboratorio Micro e Nanostrutture per la Fotonica
Centro Ricerche Casaccia

**DIAGNOSTICA ENERGETICA DI FASCI DI
PROTONI DA FOTOLUMINESCENZA DI CENTRI DI
COLORE IN CRISTALLI DI FLUORURO DI LITIO:
CORREZIONE DEL DISALLINEAMENTO
ANGOLARE TRA FASCIO E CRISTALLO**

RT/2024/6/ENEA



AGENZIA NAZIONALE PER LE NUOVE TECNOLOGIE,
L'ENERGIA E LO SVILUPPO ECONOMICO SOSTENIBILE

E. NICHELATTI

Dipartimento Nucleare
Divisione Tecnologie Fisiche e Sicurezza
Laboratorio Micro e Nanostrutture per la Fotonica
Centro Ricerche Casaccia

DIAGNOSTICA ENERGETICA DI FASCI DI
PROTONI DA FOTOLUMINESCENZA DI CENTRI DI
COLORE IN CRISTALLI DI FLUORURO DI LITIO:
CORREZIONE DEL DISALLINEAMENTO
ANGOLARE TRA FASCIO E CRISTALLO

RT/2024/6/ENEA



AGENZIA NAZIONALE PER LE NUOVE TECNOLOGIE,
L'ENERGIA E LO SVILUPPO ECONOMICO SOSTENIBILE

I rapporti tecnici sono scaricabili in formato pdf dal sito web ENEA alla pagina www.enea.it

I contenuti tecnico-scientifici dei rapporti tecnici dell'ENEA rispecchiano l'opinione degli autori e non necessariamente quella dell'Agenzia

The technical and scientific contents of these reports express the opinion of the authors but not necessarily the opinion of ENEA.

DIAGNOSTICA ENERGETICA DI FASCI DI PROTONI DA FOTOLUMINESCENZA DI CENTRI DI COLORE IN CRISTALLI DI FLUORURO DI LITIO: CORREZIONE DEL DI-SALLINEAMENTO ANGOLARE TRA FASCIO E CRISTALLO

E. Nichelatti

Riassunto

La fotoluminescenza da centri di colore nei cristalli di fluoruro di litio (LiF) è sfruttata per caratterizzare lo spettro energetico di fasci di protoni accelerati nell'intervallo di energie da qualche MeV a diverse decine di MeV. L'approccio, applicato negli ultimi anni con successo all'acceleratore lineare TOP-IMPLART, è stato sviluppato dal nostro laboratorio e consiste di diverse fasi: (a) irraggiamento a incidenza radente del cristallo di LiF con il fascio di protoni; (b) visualizzazione in un microscopio a fluorescenza della mappa di fotoluminescenza emessa dai centri di colore formati nel cristallo per l'interazione ionizzante con i protoni; (c) elaborazione di tale mappa per ricavare una stima dello spettro energetico del fascio di protoni. In quest'ultima fase, il ricorso a un modello analitico per il calcolo di curve di Bragg di protoni accelerati in cristalli di LiF, opportunamente corretto per includere la fuoriuscita di protoni dal cristallo dovuta alla diffusione multipla di Coulomb, permette l'esecuzione di un algoritmo per determinare lo spettro energetico del fascio. In questo Rapporto Tecnico si propone un aggiornamento di tale algoritmo, mediante elaborazione esterna con il software Monte Carlo FLUKA, per correggere l'effetto di un eventuale disallineamento angolare, nella prima fase, tra fascio di protoni e cristallo di LiF.

Parole chiave: fluoruro di litio; centri di colore; fotoluminescenza; radiofotoluminescenza; protoni; diagnostica energetica; diffusione multipla di Coulomb; Monte Carlo; FLUKA.

Abstract

Photoluminescence emitted by color centers within lithium fluoride (LiF) crystals is utilized to characterize the energy spectrum of accelerated proton beams ranging from a few MeV to several tens of MeV. This method, successfully employed at the TOP-IMPLART linear accelerator, was developed by our laboratory and involves several stages: (a) exposing the LiF crystal to the proton beam at grazing incidence; (b) visualizing the photoluminescence map emitted by the color centers formed in the crystal due to ionizing interactions with protons using a fluorescence microscope; (c) processing this map to estimate the energy spectrum of the proton beam. In this final phase, the use of an analytical model for the calculation of Bragg curves of protons accelerated in LiF crystals, appropriately corrected to include the exit of protons from the crystal due to multiple Coulomb scattering, allows the execution of an algorithm to determine the energy spectrum of the beam. This Technical Report proposes an update of this algorithm, through external processing with the Monte Carlo FLUKA software, to correct the effect of a possible angular misalignment, in the first phase, between the proton beam and the LiF crystal.

Keywords: lithium fluoride; color centers; photoluminescence; radiophotoluminescence; protons; energy diagnostics; multiple Coulomb scattering; Monte Carlo; FLUKA.

INDICE

1. Introduzione	7
2. Diffusione multipla di Coulomb e algoritmo ARO	8
3. Disallineamento angolare e algoritmo SARO.....	9
3.1 Spettro energetico iniziale	11
3.2 Correzione della misura per il disallineamento angolare	12
3.3 Spettro energetico corretto.....	14
4. Esempio.....	15
5. Conclusioni	18
Ringraziamenti.....	18
Bibliografia	19

1. Introduzione

Nel corso degli ultimi lustri, la rivelazione di radiazione mediante rivelatori basati sulla fotoluminescenza del fluoruro di litio (LiF) è diventata una tecnica consolidata e affidabile, per utilizzi dosimetrici [1-4], di imaging X [5,6], di rivelazione di tracce ioniche [7-10] e per la diagnostica energetica di fasci di protoni [11-21]. L'interazione di questo materiale con vari tipi di radiazione, come ioni accelerati, raggi X, raggi gamma ed elettroni, provoca nella sua struttura cristallina la formazione di difetti puntiformi noti come centri di colore (CC) [22]. Alcuni di essi, come i difetti F_2 ed F_3^+ (due elettroni legati rispettivamente a due e tre vacanze anioniche), presentano ampie bande visibili di fotoluminescenza (FL), rispettivamente nel rosso e nel verde, quando vengono eccitati nel blu, che è la regione spettrale in cui entrambi assorbono [23-27].

Come già accennato, un'applicazione delle proprietà dei CC è la diagnostica energetica dei fasci di protoni con un'energia che va da pochi MeV a diverse decine di MeV [11-21]. In questa specifica applicazione, utilizzata per la caratterizzazione energetica dell'acceleratore lineare TOP-IMPLART sviluppato presso il laboratorio NUC-TECFIS-ACP del centro ENEA di Frascati [28,29], un cristallo di LiF viene posizionato di taglio lungo il percorso del fascio di protoni, affinché venga attraversato per attivare la formazione dei CC al suo interno. La distribuzione spaziale di questi CC all'interno del cristallo dipende linearmente (per tempi di esposizione al fascio non troppo lunghi, al fine di evitare effetti di saturazione) dall'energia ceduta dai protoni al materiale. Successivamente, il cristallo irradiato viene analizzato mediante un microscopio a fluorescenza, nel quale una sorgente luminosa blu eccita i CC formati nel materiale. Questo processo consente di generare una mappa di FL, la quale può essere salvata come file immagine per un'analisi quantitativa. Quest'ultima coinvolge la selezione di una sezione longitudinale della mappa di FL e la derivazione di una curva sperimentale di intensità di FL in funzione della profondità di penetrazione. Questa curva è, punto per punto, proporzionale all'energia depositata dai protoni nel LiF e può essere considerata equivalente alla curva di Bragg dei protoni nel materiale a meno di un fattore di proporzionalità.

Qualche anno fa, il nostro gruppo ha introdotto una rappresentazione, sottoforma di funzione analitica, delle curve di Bragg di protoni nel LiF, la quale è valida anche per distribuzioni energetiche non monocromatiche [17]. Questa funzione permette di eseguire best fit di una curva sperimentale di Bragg per stimare lo spettro energetico del fascio di protoni che l'ha prodotta con l'irraggiamento. Più recentemente, tale procedura è stata arricchita includendo

l'effetto di graduali perdite di fluensa causate dalla fuoriuscita di protoni dalle facce del cristallo per diffusione multipla di Coulomb [30], nonché sviluppando un nuovo algoritmo, basato sulla random optimization [31], per la stima dello spettro energetico [32]. Tuttavia, è importante notare che per la procedura in questione si assume un'incidenza perfettamente radente (angolo d'incidenza radente pari a zero) del fascio sul cristallo; pertanto, possono verificarsi errori nella stima dello spettro energetico in caso di un lieve disallineamento angolare nella geometria di irraggiamento. Questo Rapporto Tecnico propone un aggiornamento della procedura di analisi, introducendo un sistema che corregge tali errori con un approccio approssimato basato sui risultati di specifiche simulazioni Monte Carlo.

2. Diffusione multipla di Coulomb e algoritmo ARO

Omettendo in questo Rapporto Tecnico una descrizione della parte sperimentale della diagnostica energetica, disponibile in altre pubblicazioni [11-21], si procede direttamente all'illustrazione del conseguente processo di analisi della curva di Bragg per la stima dello spettro energetico del fascio mediante l'algoritmo, chiamato algoritmo ARO (Adaptive Random Optimization), recentemente introdotto per fasci di elettroni in acqua [33] e di protoni nel LiF [32]. Il funzionamento dell'algoritmo ARO può essere schematizzato come segue.

1. Si assume una distribuzione iniziale di energia di forma gaussiana, di larghezza scelta arbitrariamente, in modo che l'energia di picco corrisponda più o meno al picco di Bragg più profondo della curva di Bragg sperimentale che si vuole elaborare. Questa distribuzione viene divisa in un certo numero N di rettangolini (bin) al fine di rappresentarla come un istogramma.
2. Utilizzando l'espressione analitica per la curva di Bragg di protoni in cristalli di LiF, nella versione che include perdite di protoni dalle facce dei cristalli dovute a diffusione multipla di Coulomb [32], si calcolano le curve di Bragg monocromatiche corrispondenti a ogni bin e le si combinano linearmente pesandole con le altezze dei loro bin.
3. La curva di Bragg composta così ottenuta viene confrontata con quella sperimentale calcolandone la loro mutua distanza quadratica media.
4. Trattando le altezze dei bin dello spettro energetico come parametri di fit, si applica a essi una random optimization: ai valori di tali parametri vengono aggiunti o sottratti incrementi presi in modo casuale secondo la statistica di Gauss con una predeterminata deviazione standard e valor medio zero, ottenendo così nuove altezze dei bin. Questo è equivalente a muovere, nello spazio degli N parametri di fit, il punto attuale

verso un nuovo punto posto a una distanza trovata con distribuzione di probabilità gaussiana N -dimensionale [31].

5. Con il nuovo spettro energetico così ottenuto si calcola la corrispondente curva di Bragg composta e la si confronta con quella sperimentale. Se la distanza quadratica media da essa è diminuita rispetto allo step precedente, si tiene il nuovo spettro energetico, altrimenti lo si scarta e si torna a quello precedente.
6. Questo processo viene iterato per un numero desiderato di volte. Queste iterazioni sono, a loro volta, raggruppate internamente a cicli successivi; all'inizio di ognuno di questi cicli è consentito cambiare il numero N di bin, tipicamente incrementandolo per ottenere via via una miglior risoluzione spettrale. Questa possibilità di incrementare N a ogni ciclo è la caratteristica per la quale è stato anteposto il termine Adaptive a Random Optimization per definire l'approccio.
7. L'algoritmo termina quando l'operatore giudica che sia stato raggiunto un livello sufficiente di riproduzione della curva di Bragg sperimentale. Lo spettro energetico ottenuto è considerato come quasi definitivo; infatti, successivamente si applica il metodo bootstrap [34] per valutare le incertezze da associare allo spettro energetico definitivo, che sarà quello mediano ottenuto dalla distribuzione risultante dal bootstrap.

Nel seguito, mostro come propongo di migliorare questo algoritmo introducendo un metodo di correzione per eventuali lievi disallineamenti angolari del cristallo rispetto alla direzione di propagazione del fascio di protoni.

3. Disallineamento angolare e algoritmo SARO

Il nuovo algoritmo proposto, basato sul precedentemente descritto algoritmo ARO, utilizza simulazioni Monte Carlo di deposizione di energia nei cristalli di LiF da parte di protoni accelerati per correggere l'effetto di eventuali disallineamenti del cristallo rispetto alla direzione del fascio di protoni. Per questo motivo, SARO è il nome di questo nuovo algoritmo, inteso come acronimo di Simulation-assisted Adaptive Random Optimization.

Per la descrizione che segue, si assume che un fascio collimato di protoni, d'intensità trasversale omogenea, si propaghi lungo l'asse delle z , con un lieve disallineamento angolare θ rispetto a esso. La Fig. 1 mostra uno schema della configurazione di irraggiamento; in questa figura, l'angolo θ è rappresentato esageratamente grande per maggior chiarezza grafica. Il cristallo di LiF è posizionato di taglio lungo l'asse delle z , essendo uno dei suoi

lati più sottili (spessore $h = 1 \text{ mm}$) rivolto verso il fascio di protoni incidente, verticalmente centrato rispetto a esso e posizionato in $z = 0$. Lungo la direzione z , il cristallo è scelto essere opportunamente più lungo del range dei protoni, in modo che il picco di Bragg cada al suo interno.

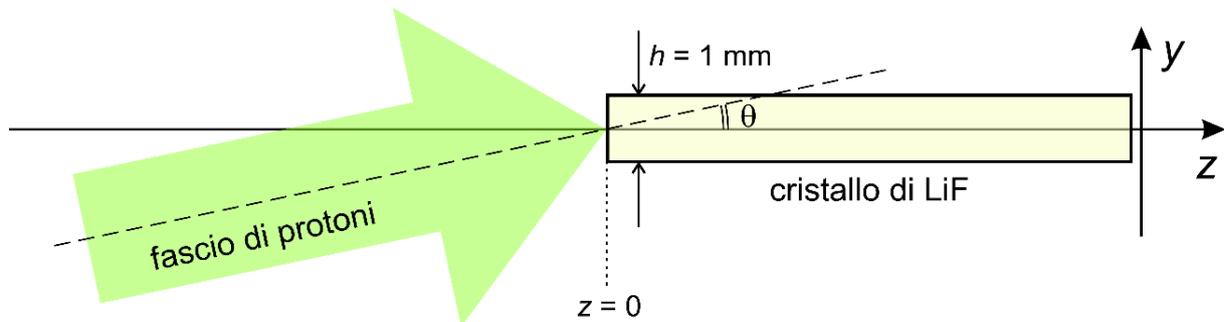


Figura 1: Schema dell'irraggiamento a incidenza radente di un cristallo di LiF con un fascio collimato di protoni lievemente disallineato rispetto alle facce del cristallo. L'asse delle x è da considerarsi perpendicolare al piano dell'immagine.

In condizioni ideali di incidenza con angolo perfettamente radente ($\theta = 0^\circ$), la deposizione di energia a distanze superiori al picco di Bragg calerebbe gradualmente a zero entro una distanza determinata dalla statistica casuale delle interazioni tra protoni e materiale; la gradualità di questo calo è dovuta al cosiddetto range straggling [30]. Tuttavia, nelle condizioni in cui l'incidenza avviene con $\theta \neq 0^\circ$ (come in Fig. 1), la larghezza del fascio, supposta essere ben superiore allo spessore h del cristallo, determina l'entrata di protoni nel cristallo attraverso le facce orizzontali di esso (giacenti su piani $y = \text{costante}$) anche a distanze significativamente superiori al picco di Bragg nel LiF, cosicché non si osserva il graduale calo a zero dell'energia depositata oltre tale picco, bensì un plateau.

La Fig. 2 mostra un esempio di tale fenomeno: in essa sono riportate le curve di trasferimento lineare di energia (LET, da Linear Energy Transfer), simulate con il metodo Monte Carlo utilizzando il software FLUKA [35-38], che fasci monocromatici di protoni, lateralmente estesi e omogenei, depositano in un cristallo di LiF spesso 1 mm per tre valori dell'angolo d'incidenza radente θ . Si può notare la presenza non trascurabile del plateau per gli angoli diversi da zero. Si osservi come, a parità di angolo d'incidenza radente non nullo, l'altezza del plateau rispetto a quella del picco di Bragg diventi più rilevante al crescere dell'energia. Per esempio, considerando il caso $\theta = 2^\circ$, la LET in corrispondenza del plateau vale circa

il 4.5% di quella del picco di Bragg per il fascio da 30 MeV, 14.4% per il fascio da 50 MeV e 33.9% per quello da 70 MeV.

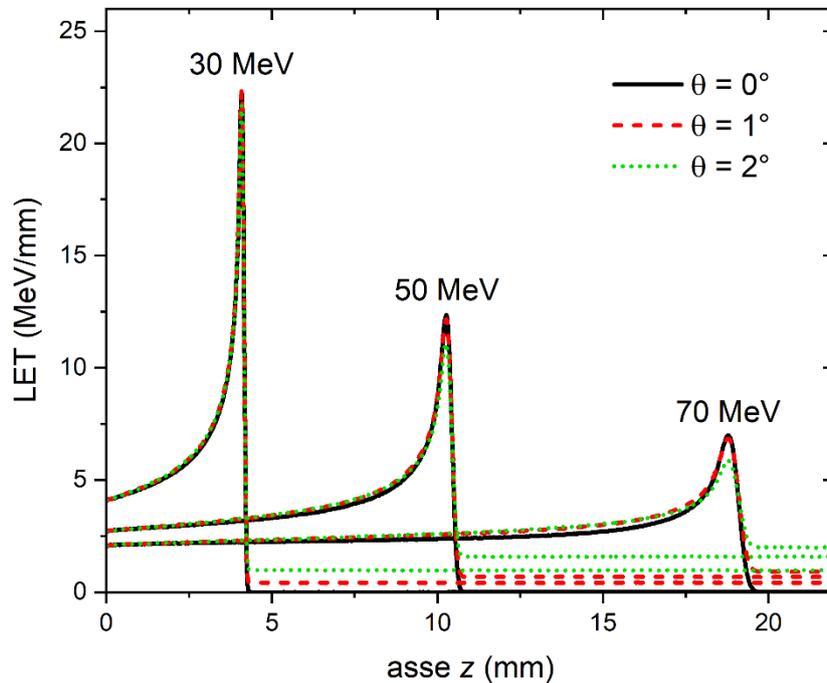


Figura 2: Simulazione di curve di trasferimento lineare di energia (LET) depositate da fasci monocromatici di protoni in un cristallo di LiF spesso 1 mm per tre valori dell'angolo d'incidenza radente.

3.1 Spettro energetico iniziale

Dopo l'irraggiamento col fascio di protoni, avvenuto in presenza di un angolo d'incidenza radente $\theta \neq 0^\circ$, viene visualizzata nel microscopio a fluorescenza, il cui obiettivo inquadra la faccia superiore del cristallo dal semispazio delle y positive, l'immagine di FL visibile dovuta all'emissione dei CC F_2 ed F_3^+ che si sono formati nel LiF. L'emissione è il contributo integrato di tutti i centri lungo lo spessore h , essendo tutti essi investiti dalla sorgente di eccitazione a luce blu del microscopio. Questa immagine viene salvata su file; quindi, viene estratta una regione d'interesse (RDI), come mostrato in Fig. 3, la cui intensità luminosa lungo z rappresenta la curva di Bragg sperimentale, che indico con $I_{sp}(z, \theta)$. Nella immagine in Fig. 3, la striscia più luminosa sul lato destro rappresenta l'emissione dei CC formati in corrispondenza del picco di Bragg, aventi densità superiore alle altre zone del cristallo a causa della maggior energia localmente rilasciata dai protoni.

Dopo che la curva sperimentale di Bragg è resa disponibile, si applica a essa l'algoritmo ARO, tralasciando di includere nell'elaborazione la parte della curva che si ritiene essere oltre il picco di Bragg; come discusso in precedenza, questa parte non cala gradualmente a zero a causa dell'angolo d'incidenza radente non nullo, ma forma un plateau la cui lunghezza è determinata dall'estensione laterale del fascio di protoni. L'esclusione di tale plateau da questa prima elaborazione permette di ottenere con l'algoritmo ARO una curva che riproduce quella sperimentale ovunque fuorché nella zona del plateau, dove invece la curva calcolata con ARO cala gradualmente a zero come se l'irraggiamento fosse avvenuto a incidenza perfettamente radente. L'elaborazione fornisce una stima $\Psi(E)$ dello spettro energetico, essendo E la variabile energia. Chiaramente, tale stima non può essere attendibile perché l'algoritmo ARO assume incidenza perfettamente radente, ossia $\theta = 0^\circ$.



Figura 3: Simulazione grafica di una tipica immagine di FL catturata dall'obiettivo del microscopio a fluorescenza che inquadra la faccia superiore del cristallo di LiF dopo l'irraggiamento con i protoni. Il rettangolo arancione è la regione d'interesse (RDI) la cui intensità luminosa, integrata lungo x , fornisce la curva di Bragg sperimentale $I_{sp}(z, \theta)$.

3.2 Correzione della misura per il disallineamento angolare

Lo spettro temporaneo così ottenuto, $\Psi(E)$, viene utilizzato come spettro di input per effettuare delle simulazioni Monte Carlo, col software FLUKA [35-38], di deposizione dell'energia in un cristallo di LiF da parte di un fascio di protoni. Le dimensioni del cristallo e del fascio sono impostate in FLUKA come identiche a quelle delle loro controparti reali. La prima di queste simulazioni è eseguita imponendo $\theta = 0^\circ$. La curva di Bragg simulata viene indicata con $I_{FL}(z, 0; \Psi)$ dopo averla normalizzata in modo che l'altezza del suo picco corrisponda a quella della curva sperimentale. Dopo questa prima simulazione, si inizia a variare in FLUKA il valore dell'angolo d'incidenza radente θ confrontando la curva risultante, con la

stessa normalizzazione al picco di cui sopra, fintanto che non si trova una coincidenza di queste due curve nei valori del plateau che si trova oltre il picco di Bragg. Si indica con $I_{FL}(z, \theta; \Psi)$ la curva di Bragg simulata così trovata.

A questo punto, si cerca di stimare la curva di Bragg sperimentale che sarebbe stata misurata se l'angolo d'incidenza radente fosse stato perfettamente zero. Indicando con z_B la coordinata del picco di Bragg, si osserva che disponiamo di due simulazioni Monte Carlo che soddisfano alle seguenti condizioni:

$$I_{FL}(z, 0; \Psi) \cong I_{sp}(z, \theta) \quad \text{per } z \lesssim z_B; \quad (1)$$

$$I_{FL}(z, \theta; \Psi) \cong I_{sp}(z, \theta) \quad \text{per } z \gtrsim z_B. \quad (2)$$

Supponendo che le variazioni di I_{FL} introdotte cambiando l'angolo di incidenza radente da zero a θ siano abbastanza piccole da poterle considerare perturbazioni al primo ordine e indicando con $\Psi_0(E)$ lo spettro energetico che avremmo stimato applicando l'algoritmo ARO alla misura ipotetica $I_{sp}(z, 0)$ che sarebbe stata ottenuta se in fase sperimentale l'angolo d'incidenza radente fosse stato perfettamente zero, si può approssimativamente scrivere

$$\begin{aligned} I_{FL}(z, 0; \Psi) &\equiv I_{FL}(z, 0; \Psi_0) + [I_{FL}(z, 0; \Psi) - I_{FL}(z, 0; \Psi_0)] \\ &\cong I_{sp}(z, 0) + [I_{FL}(z, 0; \Psi) - I_{FL}(z, 0; \Psi_0)]. \end{aligned} \quad (3)$$

Essendo per ipotesi $\Psi_0(E)$ lo spettro corretto, cioè quello che si otterrebbe applicando l'algoritmo ARO alla misura ipotetica $I_{sp}(z, 0)$ ottenuta ad angolo perfettamente radente, deve valere anche per l'angolo $\theta \neq 0^\circ$ una relazione analoga a quella mostrata nell'Eq. (3), ossia

$$\begin{aligned} I_{FL}(z, \theta; \Psi) &\equiv I_{FL}(z, \theta; \Psi_0) + [I_{FL}(z, \theta; \Psi) - I_{FL}(z, \theta; \Psi_0)] \\ &\cong I_{sp}(z, \theta) + [I_{FL}(z, \theta; \Psi) - I_{FL}(z, \theta; \Psi_0)]. \end{aligned} \quad (4)$$

Il termine tra parentesi quadre in quest'ultima equazione può essere approssimato con l'ordine zero del suo sviluppo d Taylor in θ , ottenendo

$$I_{\text{FL}}(z, \theta; \Psi) \cong I_{\text{sp}}(z, \theta) + [I_{\text{FL}}(z, 0; \Psi) - I_{\text{FL}}(z, 0; \Psi_0)], \quad (5)$$

purché l'angolo θ sia abbastanza piccolo da poter trascurare il termine

$$\left[\frac{\partial I_{\text{FL}}}{\partial \theta}(z, 0; \Psi) - \frac{\partial I_{\text{FL}}}{\partial \theta}(z, 0; \Psi_0) \right] \theta \quad (6)$$

e quelli di ordine superiore in θ .

Il passaggio finale per valutare la correzione spettrale consiste nel sottrarre l'Eq. (5) dall'Eq. (3). Il risultato che si ottiene è

$$I_{\text{sp}}(z, 0) \cong I_{\text{sp}}(z, \theta) - [I_{\text{FL}}(z, \theta; \Psi) - I_{\text{FL}}(z, 0; \Psi)]. \quad (7)$$

Quest'ultima formula suggerisce che è possibile calcolare **approssimativamente** la misura $I_{\text{sp}}(z, 0)$, che avremmo ipoteticamente ottenuto se l'irraggiamento fosse avvenuto ad angolo radente perfettamente nullo, sottraendo alla misura reale $I_{\text{sp}}(z, \theta)$ la differenza tra le due simulazioni effettuate in FLUKA con lo spettro energetico ottenuto dalla prima elaborazione con l'algoritmo ARO.

3.3 Spettro energetico corretto

Ottenuta la misura ipotetica $I_{\text{sp}}(z, 0)$ per incidenza perfettamente radente, si può applicare a essa l'algoritmo ARO per ottenere una stima $\tilde{\Psi}_0(E)$ dello spettro energetico che dovrebbe essere, se tutto è andato bene, molto vicina a $\Psi_0(E)$. Per verificarne la bontà, si può effettuare un test conclusivo: utilizzando $\tilde{\Psi}_0(E)$ come spettro in input, si simula con FLUKA la deposizione di energia nel cristallo di LiF con un angolo d'incidenza radente pari all'angolo θ che era stato ottenuto in precedenza. Se la curva ottenuta, dopo un'opportuna normalizzazione, riproduce in modo soddisfacente quella sperimentale sia per $z \lesssim z_B$ che per $z \gtrsim z_B$, allora si può concludere che l'elaborazione effettuata con l'algoritmo SARO ha fornito una stima accettabile $\tilde{\Psi}_0(E)$ dello spettro energetico $\Psi_0(E)$.

4. Esempio

Allo scopo di verificare l'applicabilità di questo nuovo algoritmo SARO, mostro qui un esempio di elaborazione secondo le linee descritte nella Sezione precedente. Anziché analizzare una vera misura sperimentale, affronto il caso di una curva simulata di LET in un cristallo di LiF. Tale curva è supposta essere generata da un fascio di protoni caratterizzati da uno spettro energetico $\Psi_0(E)$ molto particolare. Lo spettro in questione è mostrato in Fig. 4; come si vede in tale figura, lo spettro non ha un significato fisico, ma è stato ricavato dal contorno superiore del logo ENEA. La particolare forma di questo spettro è stata scelta perché rappresenta una sfida abbastanza estrema per l'applicazione del nuovo algoritmo. Si suppone, inoltre, che il fascio di protoni investa un cristallo di LiF spesso 1 mm con incidenza radente di angolo $\theta = 1^\circ$. La sezione trasversale del fascio è ipotizzata essere uniforme in intensità e molto più ampia dello spessore del cristallo.

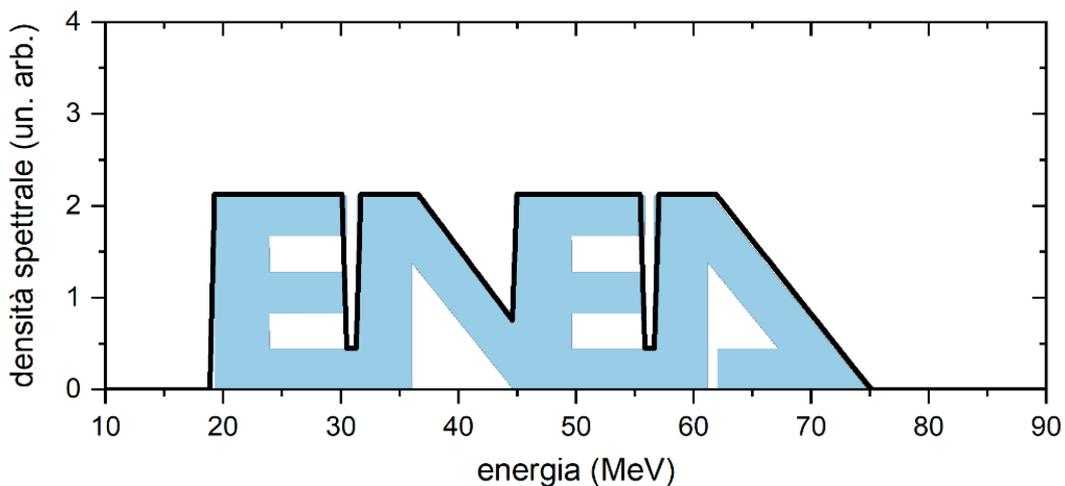


Figura 4: Spettro energetico $\Psi_0(E)$ (linea nera) usato per l'esempio di applicazione dell'algoritmo SARO. Lo spettro è stato ricavato seguendo il contorno superiore del logo ENEA (in azzurro chiaro).

La curva di LET in funzione della profondità di penetrazione z è stata simulata con FLUKA (50 milioni di protoni virtuali) ed è mostrata in Fig. 5 con la linea azzurra spessa. Anche se si tratta di una LET, è lecito identificare questa curva con la funzione $I_{sp}(z, \theta)$ nell'ipotesi che l'intensità di FL sia proporzionale alla LET punto per punto (assenza di saturazione). Come si può notare, la curva simulata non scende a zero a profondità superiori al range dei protoni (circa 21.5 mm per l'energia massima dello spettro, pari a 75 MeV, come mostra la Fig. 4), ma forma un plateau a causa dell'incidenza non perfettamente radente del fascio.

Come già spiegato in precedenza, oltre tale distanza la LET dovrebbe scendere gradualmente a zero se fosse $\theta = 0^\circ$.

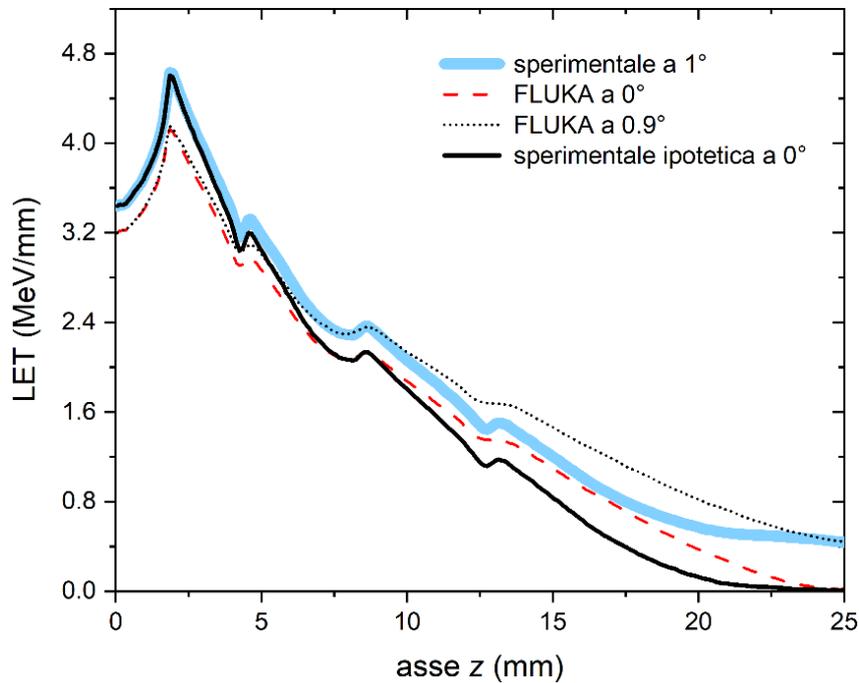


Figura 5: Curve di LET relative al test discusso nell'esempio di applicazione dell'algoritmo SARO. Vedere il testo per una descrizione dettagliata delle diverse curve qui rappresentate.

L'algoritmo ARO per protoni nel LiF è stato quindi applicato a tale LET simulata $I_{sp}(z, \theta)$, escludendo dall'elaborazione la parte di essa che si trova a profondità maggiori di circa 18 mm e con un numero finale di bin energetici $N = 200$. Come già detto, l'algoritmo ipotizza che l'incidenza del fascio sia stata perfettamente radente ($\theta = 0^\circ$); dopo alcuni cicli di iterazione e l'applicazione del metodo bootstrap per la valutazione delle incertezze, esso ha fornito una distribuzione mediana dello spettro energetico, identificabile con $\Psi(E)$, che è mostrata in Fig. 6 (linea nera a puntini). Confrontandola con lo spettro originale, anch'esso visibile in Fig. 6 (linea rossa tratteggiata), si nota una significativa differenza tra le due, attribuibile all'angolo θ d'incidenza radente non nullo.

Il passaggio successivo è stato quello di simulare con FLUKA la deposizione di energia in un cristallo di LiF spesso 1 mm da parte di un fascio collimato e omogeneo di protoni, usando come input di FLUKA lo spettro energetico $\Psi(E)$ ottenuto nella precedente fase. Una prima simulazione è stata effettuata con $\theta = 0^\circ$; la curva di LET risultante, identificabile con $I_{FL}(z, 0; \Psi)$, è quella rossa tratteggiata che appare in Fig. 5.

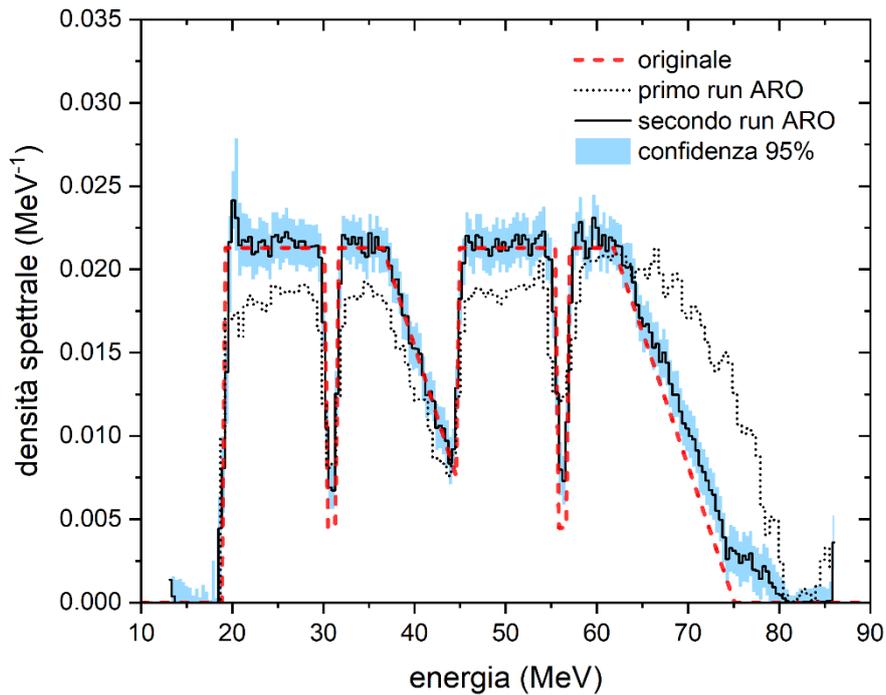


Figura 6: Spettro energetico $\tilde{\Psi}_0(E)$ ottenuto dall'applicazione dell'algoritmo SARO (secondo run ARO, linea nera continua) con incertezza al 95% di confidenza (banda azzurra) e suo confronto con lo spettro $\Psi_0(E)$ originariamente considerato (linea rossa tratteggiata). Nel grafico è riportato anche il primo spettro $\Psi(E)$ (primo run ARO, linea nera a puntini) ottenuto nella fase iniziale dell'elaborazione. Si veda il testo per ulteriori dettagli.

Successivamente, con alcuni tentativi, ho simulato la deposizione di energia nelle stesse condizioni, ma cercando un valore dell'angolo θ che portasse la coda della simulazione (ossia il plateau della curva di LET oltre circa i 2.15 mm di profondità) più o meno allo stesso livello di quella inizialmente simulata da FLUKA prima dell'applicazione dell'algoritmo ARO, ossia quella con linea spessa azzurra in Fig. 5. Il valore migliore di θ per ottenere tale sovrapposizione è risultato essere $\theta = 0.9^\circ$ e la curva di LET corrispondente, identificabile con $I_{FL}(z, \theta; \Psi)$, è mostrata in Fig. 5 con la linea nera a puntini. Si noti che, in questa fase, la selezione dell'angolo non ha fornito un valore di θ esattamente uguale a quello impostato all'inizio del test ($\theta = 1^\circ$), ma un valore prossimo a esso, commettendo perciò un errore del 10%. Va però specificato che lo scopo dell'algoritmo SARO non è quello di determinare esattamente l'angolo d'incidenza radente, bensì quello di riprodurre al meglio lo spettro energetico del fascio di protoni.

Nella fase finale della procedura, applicando l'Eq. (7) è stata stimata la misura ipotetica, identificabile con $I_{sp}(z, 0)$, che sarebbe stata registrata se l'incidenza radente fosse avvenuta con $\theta = 0^\circ$. Tale misura ipotetica è mostrata in Fig. 5 con la linea nera continua. Applicando a essa l'algoritmo ARO, è stata finalmente ottenuta la distribuzione spettrale di energia $\tilde{\Psi}_0(E)$ che può ritenersi essere una buona approssimazione di quella corretta $\Psi_0(E)$. La Fig. 6 mostra la curva mediana della distribuzione (linea nera continua), risultante dall'applicazione del metodo bootstrap (500 estrazioni casuali), insieme all'incertezza stimata con tale metodo in corrispondenza di una confidenza del 95% di probabilità (banda azzurra). Il confronto con lo spettro energetico originale (linea rossa tratteggiata) dimostra il buon esito dell'elaborazione con l'algoritmo SARO per questo particolare esempio.

5. Conclusioni

Applicare tout court l'algoritmo ARO a una misura d'intensità di FL quando l'irraggiamento con protoni del cristallo di LiF è stato effettuato in presenza di un lieve disallineamento angolare può portare a una valutazione errata dello spettro energetico dei protoni, come dimostra la curva nera a puntini nella Fig. 6. L'algoritmo SARO qui presentato permette, al prezzo di utilizzare il supporto di un simulatore Monte Carlo come FLUKA, di correggere la misura di FL per derivarne una che si sarebbe ipoteticamente ottenuta se l'angolo d'incidenza radente fosse stato perfettamente nullo. La successiva applicazione dell'algoritmo ARO a questa nuova misura ipotetica permette di stimare in modo più affidabile lo spettro energetico dei protoni. Come test, è stato mostrato un esempio di applicazione dell'algoritmo SARO al caso di una misura virtuale, rappresentata da una curva di LET generata con FLUKA.

Ringraziamenti

Ringrazio la dott.ssa Concetta Ronsivalle (ENEA C.R. Frascati, NUC-TECFIS-ACP) per la lettura critica del manoscritto e gli utili suggerimenti. Ricerca svolta nell'ambito dei progetti TOP-IMPLART, finanziato dalla regione Lazio e TECHEA, finanziato da ENEA.

Bibliografia

- [1] W.L. McLaughlin, *Colour Centres in LiF for Measurement of Absorbed Doses up to 100 MGy*, Radiat. Prot. Dosimetry **66** (1996) 197-200.
- [2] W.L. McLaughlin, J.M. Puhl, A. Kovács, M. Baranyai, I. Slezsák, M.C. Saylor, S.A. Saylor, S.D. Miller, M. Murphy, *Sunna dosimeter: an integrating photoluminescent film and reader system; work in progress*, Radiat. Phys. Chem. **55** (1999) 767-771.
- [3] J.E. Villarreal-Barajas, M. Piccinini, M.A. Vincenti, F. Bonfigli, R.F. Khan, R.M. Montereali, *Visible photoluminescence of color centers in LiF crystals for absorbed dose evaluation in clinical dosimetry*, IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. **80** (2015) 012020.
- [4] M. Piccinini, E. Nichelatti, M. Pimpinella, V. De Coste, R.M. Montereali, *Dose response of visible color center radiophotoluminescence in lithium fluoride crystals irradiated with a reference ^{60}Co gamma beam in the 1–20 Gy dose range*, Radiat. Meas. **151** (2022) 106705.
- [5] G. Baldacchini, F. Bonfigli, F. Flora, R. M. Montereali, D. Murra, E. Nichelatti, A. Faenov, and T. Pikuz, *High-contrast photoluminescent patterns in lithium fluoride crystals produced by soft x-rays from a laser-plasma source*, Appl. Phys. Lett. **80** (2002) 4810.
- [6] G. Baldacchini, F. Bonfigli, A. Faenov, F. Flora, R.M. Montereali, A. Pace, T. Pikuz, and L. Reale, *Lithium Fluoride as a Novel X-ray Image Detector for Biological μ -World Capture*, J. Nanosci. Nanotechno. **3** (2003) 483.
- [7] P. Bilski, B. Marczevska, *Fluorescent detection of single tracks of alpha particles using lithium fluoride crystals*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **392** (2017) 41-45.
- [8] P. Bilski, B. Marczevska, W. Gieszczyk, M. Kłosowski, T. Nowak, M. Naruszewicz, *Lithium fluoride crystals as fluorescent nuclear track detectors*, Radiat. Prot. Dosim. **178** (2018) 337–340.
- [9] P. Bilski, B. Marczevska, W. Gieszczyk, M. Kłosowski, M. Naruszewicz, M. Sankowska, S. Kodaira, *Fluorescent imaging of heavy charged particle tracks with LiF single crystals*, J. Lumin. **213** (2019) 82-87.
- [10] M. Sankowska, P. Bilski, B. Marczevska, *Thermal enhancement of the intensity of fluorescent nuclear tracks in lithium fluoride crystals*, Radiat. Meas. **157** (2022) 106845.
- [11] M. Piccinini, F. Ambrosini, A. Ampollini, M. Carpanese, L. Picardi, C. Ronsivalle, F. Bonfigli, S. Libera, M.A. Vincenti, R.M. Montereali, *Solid state detectors based on point defects in lithium fluoride for advanced proton beam diagnostics*, J. Lumin. **156** (2014) 170-174.

- [12] M. Piccinini, F. Ambrosini, A. Ampollini, L. Picardi, C. Ronsivalle, F. Bonfigli, S. Libera, E. Nichelatti, M.A. Vincenti, R.M. Montereali, *Photoluminescence of radiation-induced color centers in lithium fluoride thin films for advanced diagnostics of proton beams*, Appl. Phys. Lett. **106** (2015) 261108.
- [13] M. Piccinini, C. Ronsivalle, A. Ampollini, G. Bazzano, L. Picardi, P. Nenzi, E. Trinca, M. Vadrucci, F. Bonfigli, E. Nichelatti, M.A. Vincenti, R.M. Montereali, *Proton beam spatial distribution and Bragg peak imaging by photoluminescence of color centers in lithium fluoride crystals at the TOP-IMPLART linear accelerator*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **872** (2017) 41-51.
- [14] E. Nichelatti, M. Piccinini, A. Ampollini, L. Picardi, C. Ronsivalle, F. Bonfigli, M.A. Vincenti, R.M. Montereali, *Bragg-curve imaging of 7 MeV protons in a lithium fluoride crystal by fluorescence microscopy of colour centres*, EPL **120** (2017) 56003.
- [15] B. Marczevska, P. Bilski, T. Nowak, W. Gieszczyk, M. Kłosowski, *Imaging of proton Bragg peaks in LiF*, Radiat. Prot. Dosim. **178** (2018) 333-336.
- [16] M. Piccinini, E. Nichelatti, C. Ronsivalle, A. Ampollini, G. Bazzano, F. Bonfigli, P. Nenzi, V. Surrenti, E. Trinca, M. Vadrucci, M.A. Vincenti, L. Picardi, R.M. Montereali, *Visible photoluminescence of color centers in LiF crystals for advanced diagnostics of 18 and 27 MeV proton beams*, Radiat. Meas. **124** (2019) 59-62.
- [17] E. Nichelatti, C. Ronsivalle, M. Piccinini, L. Picardi, R.M. Montereali, *An analytical approximation of proton Bragg curves in lithium fluoride for beam energy distribution analysis*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **446** (2019) 29-36.
- [18] E. Nichelatti, C. Ronsivalle, M. Piccinini, L. Picardi, R.M. Montereali, *Algorithm for inversion of photoluminescent Bragg curves in lithium fluoride applied to the analysis of proton beam energy spectra*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **459** (2019) 36-42.
- [19] R.M. Montereali, M. Piccinini, A. Ampollini, L. Picardi, C. Ronsivalle, F. Bonfigli, E. Nichelatti, M.A. Vincenti, *Visible photoluminescence of color centers in lithium fluoride detectors for low-energy proton beam Bragg curve imaging and dose mapping*, Opt. Mater. **95** (2019) 109242.
- [20] 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, *Dose response and Bragg curve reconstruction by radiophotoluminescence of color centers in lithium fluoride crystals irradiated with 35 MeV proton beams from 0.5 to 50 Gy*, Radiat. Meas. **133** (2020) 106275.

- [21] E. Nichelatti, V. Nigro, M. Piccinini, M.A. Vincenti, A. Ampollini, L. Picardi, C. Ronsivalle, R.M. Montereali, *Photoluminescent Bragg curves in lithium fluoride thin films on silicon substrates irradiated with a 35 MeV proton beam*, J. Appl. Phys. **132** (2022) 014501.
- [22] W.B. Fowler, "Physics of Color Centers" (Academic Press, New York, 1968).
- [23] T.T. Basiev, S.B. Mirov, V.V. Osiko, *Room-temperature color center lasers*, IEEE J. Quantum Electron. **24** (1988) 1052-1069.
- [24] J. Nahum, D.A. Wiegand, *Optical Properties of Some F-Aggregate Centers in LiF*, Phys. Rev. **154** (1967) 817-830.
- [25] G. Baldacchini, M. Cremona, R.M. Montereali, U.M. Grassano, V. Kalinov, *Emission properties of irradiated LiF crystals excited in the F absorption band by an excimer laser*, in "Defects in Insulating Materials", Vol. 2 (O. Kanert and J. M. Spaeth, Eds.), pp. 1103-1105, World Scientific, Singapore, 1993.
- [26] G. Baldacchini, M. Cremona, G. d'Auria, R.M. Montereali, V. Kalinov, *Radiative and Nonradiative Processes in the Optical Cycle of the F_3^+ Center in LiF*, Phys. Rev. B **54** (1996) 17508-17514.
- [27] G. Baldacchini, E. De Nicola, R.M. Montereali, A. Scacco, V. Kalinov, *Optical bands of F_2 and F_3^+ centers in LiF*, J. Phys. Chem. Solids **61** (2000) 21.
- [28] C. Ronsivalle, M. Carpanese, C. Marino, G. Messina, L. Picardi, S. Sandri, E. Basile, B. Caccia, D.M. Castelluccio, E. Cisbani, S. Frullani, F. Ghio, V. Macellari, M. Benassi, M. D'Andrea, L. Strigari, *The TOP-IMPLART Project*, Eur. Phys. J. Plus **126** (2011) 68.
- [29] L. Picardi, A. Ampollini, G. Bazzano, E. Cisbani, F. Ghio, R.M. Montereali, P. Nenzi, M. Piccinini, C. Ronsivalle, F. Santavenere, V. Surrenti, E. Trinca, M. Vadrucchi, E. Wembe Tafo, *Beam commissioning of the 35 MeV section in an intensity modulated proton linear accelerator for proton therapy*, Phys. Rev. Accel. Beams **23** (2020) 020102.
- [30] B. Gottschalk, *Physics of Proton Interactions in Matter*, in "Proton Therapy Physics" (H. Paganetti, Ed.), pp. 19-60. CRC Press, Boca Raton, 2011.
- [31] J.C. Spall, *Stochastic Optimization*, in "Handbook of Computational Statistics" (J.E. Gentle, W. Härdle, Y. Mori, Eds.), pp. 169-197. Springer, Berlin, 2004.
- [32] E. Nichelatti, M. Piccinini, P. Nenzi, L. Picardi, C. Ronsivalle, R.M. Montereali, *Proton-beam energy diagnostics by color-center photoluminescence imaging in LiF crystals: implementation of multiple Coulomb scattering into an analytical Bragg-curve model*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **547** (2024) 165207.
- [33] E. Nichelatti, M.D. Astorino, F. Borgognoni, C. Ronsivalle, *An iterative algorithm to estimate the energy spectrum of an electron beam from PDD curves*, 14th International

Particle Accelerator Conference (IPAC'23), Venice (Italy), 2023. JACoW Publishing Proceedings 814-817.

- [34] M. Bonamente, "Statistics and Analysis of Scientific Data," 2nd ed. (Springer, New York, 2017), pp. 230-234.
- [35] Sito web ufficiale del software CERN FLUKA. Disponibile online: <https://fluka.cern>.
- [36] G. Battistoni, T. Boehlen, F. Cerutti, P.W. Chin, L.S. Esposito, A. Fassò, A. Ferrari, A. Lechner, A. Empl, A. Mairani, A. Mereghetti, P. Garcia Ortega, J. Ranft, S. Roesler, P.R. Sala, V. Vlachoudis, G. Smirnov, *Overview of the FLUKA code*, Ann. Nucl. Energy **82** (2015) 10-18.
- [37] C. Ahdida, D. Bozzato, D. Calzolari, F. Cerutti, N. Charitonidis, A. Cimmino, A. Coronetti, G. L. D'Alessandro, A. Donadon Servelle, L. S. Esposito, R. Froeschl, R. García Alía, A. Gerbershagen, S. Gilardoni, D. Horváth, G. Hugo, A. Infantino, V. Kouskoura, A. Lechner, B. Lefebvre, G. Lerner, M. Magistris, A. Manousos, G. Moryc, F. Ogallar Ruiz, F. Pozzi, D. Prelicpean, S. Roesler, R. Rossi, M. Sabaté Gilarte, F. Salvat Pujol, P. Schoofs, V. Stránský, C. Theis, A. Tsinganis, R. Versaci, V. Vlachoudis, A. Waets, M. Widorski, *New Capabilities of the FLUKA Multi-Purpose Code*, Front. Phys. **9** (2022) 788253.
- [38] V. Vlachoudis, *FLAIR: A Powerful But User Friendly Graphical Interface For FLUKA*, in Proc. Int. Conf. on Mathematics, Computational Methods & Reactor Physics (M&C 2009), Saratoga Springs, New York, 2009.

ENEA
Servizio Promozione e Comunicazione
www.enea.it

Stampa: Laboratorio Tecnografico ENEA - C.R. Frascati
maggio 2024