

2 ef.
3

INTRODUCCION A LA DOSIMETRIA
TERMOLUMINISCENTE
TEORIA Y EXPERIMENTACION

TESIS PROFESIONAL
GAMAL AKABANI HNEIDE
FACULTAD DE CIENCIAS
FISICO
UNAM
1986



UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis está protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

INDICE

- CAPITULO 1. Introducción.
- CAPITULO 2. Teoría Termoluminiscente.
 - 2.1 Termoluminiscencia.
 - 2.2 Teoría de bandas.
 - 2.3 Trampas y centros de recombinación.
 - 2.4 Procesos de recombinación.
- CAPITULO 3. Modelos Termoluminiscentes.
 - 3.1 Modelo simple.
 - 3.2 Adiciones al modelo simple.
 - 3.3 Modelos complejos.
 - 3.4 Soluciones a las ecuaciones de vaciado de trampas.
 - 3.5 Supralinealidad y sensibilidad.
- CAPITULO 4. Dosimetría Termoluminiscente.
 - 4.1 Requerimientos generales de los dosímetros termoluminiscentes.
 - 4.1.1 Respuesta a la dosis absorbida.
 - 4.1.2 Respuesta a energías.
 - 4.1.3 Desvanecimiento y estabilidad.
 - 4.1.4 Procedimientos de recocido.
 - 4.2 Materiales termoluminiscentes.
- CAPITULO 5. Aplicaciones de la Dosimetría Termoluminiscente.
 - 5.1 Dosimetría personal.
 - 5.2 Monitoreo ambiental.
 - 5.3 Aplicaciones medicas.
- CAPITULO 6. Instrumentación.
- CAPITULO 7. Experimentación: Dependencia angular de los dosímetros TLD-700.
- CAPITULO 8. Conclusiones.

CAPITULO 1

INTRODUCCION

Una gran cantidad de artículos han sido publicados haciendo referencia al fenómeno termoluminiscente, por ejemplo en el volumen 175 de "Nuclear Instruments and Methods" correspondiente al año de 1976 se pueden encontrar por lo menos un ciento de artículos relacionados a este fenómeno. Es por lo tanto básico el tratar de dar una visión clara, en forma introductoria, al concepto de la termoluminiscencia y continuar con las ideas elementales en lo que al fenómeno se refiere. El capítulo 2 muestra la relación que guarda la termoluminiscencia con el fenómeno generalizado de la luminiscencia, continuando con las bases del estado sólido y teoría de bandas para establecer así el comportamiento de los electrones en un cristal. Dado que los modelos termoluminiscentes se basan en los conceptos de trampas y centros de recombinación, se discute el comportamiento de estas (para huecos y electrones) en función de sus características en la red cristalina. La emisión de luz es consecuencia de una recombinación radiativa de un electrón con un hoyo, pero existe la posibilidad de que esta recombinación no llegue a resultar radiativa y la energía del electrón pueda ser disipada en forma de fonones en la red del cristal. Es por ésto que una breve discusión de los procesos de recombinación muestran los tipos de emisiones de luz posibles cuando un material es excitado

térmicamente. En el capítulo 3 se presentan algunos modelos, desde los mas simples hasta los mas complejos. Nos es en vano el quere darle más énfasis a los conceptos teóricos en los que éstos modelos se basan ya que muchas de las propiedades y aplicaciones dependen fuertemente de su comportamiento. El lector posiblemente pueda preguntarse a qué se debe que la termoluminiscencia tenga tanta popularidad, versatilidad, así como un método experimental de mucha ayuda. Bien, posiblemente la respuesta se encuentre en las páginas de este escrito en la que se trata de ver al fenómeno en su forma más clara.

Hoy en día la termoluminiscencia encuentra muchas areas de aplicación como en medicina, física del estado sólido, arqueología, geología, etc. Una de estas variadas areas es la de la dosimetría de la radiación que de hecho es un enorme campo de investigación. La aplicación de la termoluminiscencia en esta area ha resultado fructifera. El objetivo de este escrito es el de dar una introducción a la utilización de la termoluminiscencia en dosimetría y ver las aplicaciones potenciales en las distintas subareas de esta rama.

El uso de la termoluminiscencia en el area de la dosimetría de la radiación implica un profundo estudio de los materiales termoluminiscentes ante los diversos tipos de radiación, condiciones del material (tratamientos térmicos) y su dependencia en la energía, dosis y rapidez de dosis, así como las condiciones del medio ambiente. Una breve discusión sobre éstos factores así

como a los tipos de recocido requeridos para la obtención de una respuesta son de suma importancia en la aplicación práctica.

Los diferentes tipos de materiales termoluminiscentes son tratados muy brevemente en el capítulo 4; estaría fuera de el alcance el querer tratar individualmente material por material, pero en resumen en forma de tabla se muestran las propiedades mas importantes de ellos para un aprovechamiento óptimo.

Las aplicaciones de la termoluminiscencia en el área de la dosimetría de la radiación estan divididas en tres grupos, que son: dosimetria personal, aplicaciones medicas y monitoreo ambiental. El capítulo 5 muestra brevemente algunas aplicaciones prácticas. El capítulo 6 muestra los aspectos instrumentales basicos que se requieren en la dosimetria termoluminiscente; incluyendo algunas inovaciones en la instrumentación asociada.

El capítulo 7 trata de la respuesta de los dosímetros TLD cuando este es expuesto a radiación, para diferente angulo de incidencia, y por último bienen en el capítulo 8 las conclusiones de este trabajo.

CAPITULO 2

TEORIA TERMOLUMINISCENTE

2.1 Termoluminiscencia.

Termoluminiscencia es la emisión de luz debido al calentamiento de un semiconductor ó aislador . Esto no debe confundirse con la emisión de luz espontánea cuando un material es calentado hasta su incandescencia. El proceso termoluminiscente consiste en la absorción de energía cuando el material es irradiado y la correspondiente emisión de luz cuando el material es estimulado térmicamente. De hecho se encuentran tres ingredientes necesarios para la producción del fenómeno termoluminiscente. Primero, el material debe ser un aislador ó un semiconductor; es claro que metales no exhiben propiedades luminiscentes. Segundo, el material debe tener un tiempo de absorción de energía de la radiación. Tercero, la luminscencia es obtenida mediante el calentamiento del material. Un hecho importante a considerar es que una vez calentado el material y emitida la luz, éste al ser enfriado y calentado de nuevo no exhibe luminiscencia. Con el fin de reexhibir luminiscencia el material deberá ser expuesto a la radiación y de nuevo estimulado térmicamente.

Los principios fundamentales que gobiernan el proceso termoluminiscente son esencialmente los mismos que gobiernan el proceso luminiscente en general. Con el fin de dar una

perspectiva general al fenómeno termoluminiscente sería constructivo examinar el fenómeno luminiscente.

Cuando un material es irradiado, parte de la energía puede ser absorbida y reemitida como luz (fotón) de mayor longitud de onda. De hecho lo anterior es a lo que se domina proceso luminiscente. La longitud de onda de la luz emitida es característica del material luminiscente pero no de la radiación incidente. Es claro que no solo concierne el espectro de luz visible sino también otras longitudes como infrarrojo y ultravioleta.

Los diversos fenómenos de luminiscencia llevan prefijos que reflejan el tipo de radiación usada para excitar la emisión de luz. Fotoluminiscencia; excitación mediante el uso de luz ultravioleta y visible. Radioluminiscencia; excitación mediante reacciones nucleares, rayos gamma, partículas beta, etc. Catodoluminiscencia; mediante electrones. Quimioluminiscencia; mediante el uso de energía química. Triboluminiscencia; mediante el uso de la energía mecánica. Electroluminiscencia; mediante energía eléctrica y por último Sonoluminiscencia; mediante ondas sonoras.

La emisión de luz toma lugar en un cierto tiempo característico t_0 después de la absorción de la radiación, tal tiempo permite clasificar los procesos luminiscentes (fig. 2.1). El proceso fluorescente es aquel en que $t_0 < 10^{-8}$ seg. y el proceso fosforescente en el que $t_0 > 10^{-8}$ seg.

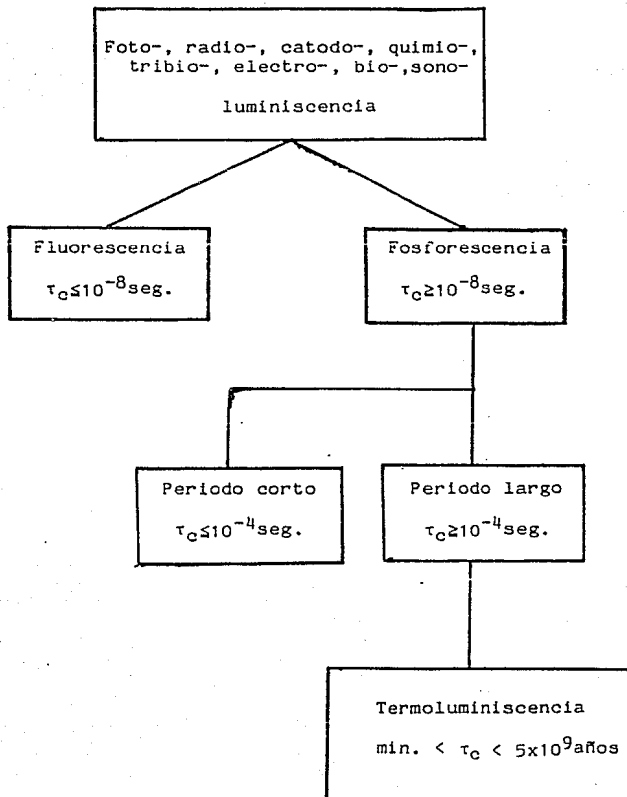


Figura 2.1. Arbol familiar del fenómeno termoluminiscente. El prefijo al término indica el modo de excitación, y el tiempo t_c de excitación y desexcitación los distingue entre fluorescencia y fosforescencia.

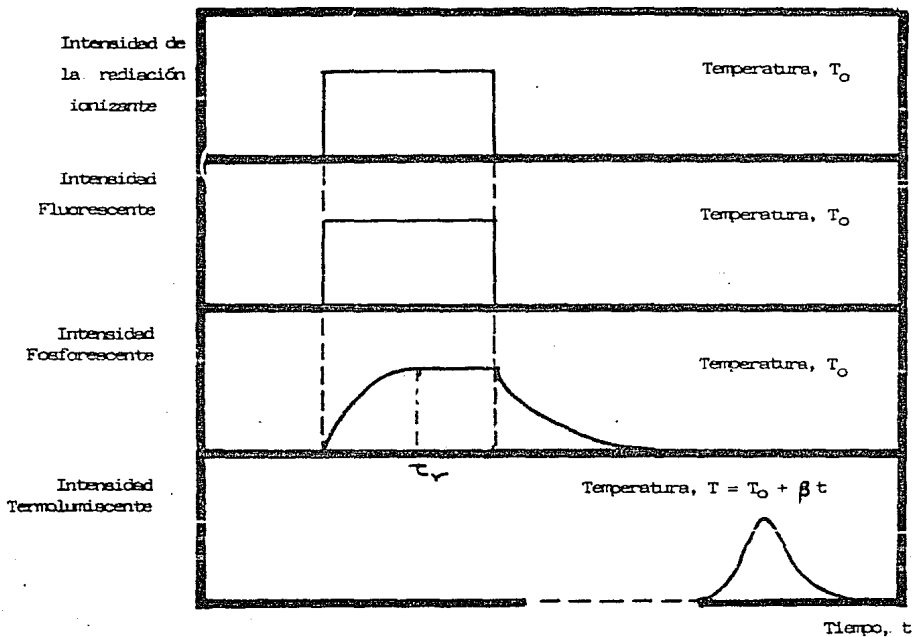


Figura 2.2. Relación entre la radiación absorbida y la emisión fluorescente, fosforescente y termoluminiscente. T_0 es la temperatura a la cual la irradiación toma lugar; β es la razón de calentamiento; τ_r es el tiempo al cual la irradiación termina y el decaimiento comienza.

El valor de $t_c < 10^{-8}$ provee de una definición para el proceso de emisión fluorescente. La emisión fluorescente toma lugar simultáneamente con la absorción de la radiación y cesa inmediatamente en ausencia de ésta (fig. 2.2).

En general el proceso termoluminiscente es explicado mediante la absorción de energía de la radiación incidente transferida a los electrones del material que son excitados del estado base g al estado excitado e (fig. 2.3a). La emisión del fotón luminiscente ocurre cuando los electrones excitados retornan a su estado base (transición ii). Para el fenómeno fluorescente el proceso de transición entre (i) y (ii) se lleva a cabo en un tiempo $t_c < 10^{-8}$ seg., y es independiente de la temperatura. Para el proceso fosforescente el diagrama de niveles de energía se ve modificado (fig. 2.3b) por la presencia de niveles metaestables m en el área prohibida entre g y e . Un electrón excitado de g hasta e puede llegar a ser atrapado en m donde éste permanecerá hasta que se le transfiera la suficiente energía E para retornar al estado e de donde podrá regresar al estado g con la subsiguiente emisión de luz. Por argumentos termodinámicos se puede afirmar que el tiempo de retención ó vida media del electrón en la trampa m a una temperatura T está dada por (6):

$$\tau = s^{-1} \exp(E/kT) \quad (2.1)$$

donde s es una constante, E la diferencia de energía entre e y m

llamada profundidad de la trampa y k la constante de Boltzman.

La explicación del fenómeno fosforescente basado en el modelo de niveles energéticos de la teoría de sólidos ha resultado satisfactoria, la teoría no fué desarrollada sino hasta el trabajo de Randall y Wilkins^(1a,b). Estos autores suponen el hecho de que una vez que el electrón ha sido liberado de la trampa m y retorna a el estado e , la probabilidad de que éste regrese a m es despreciable en comparación con la probabilidad de retorno al estado base g . La intensidad de la emisión fosforescente al instante $I(t)$ es proporcional al numero de recombinaciones. En este caso, las transiciones $e-g$ son gobernadas por las transiciones $m-e$ y por lo tanto $I(t)$ es proporcional a la rapidez de electrones emitidos por la trampas. Consecuentemente se tiene que :

$$I(t) = - C \, dn/dt = C \, n/\tau \quad (2.2)$$

donde C es la constante de proporcionalidad y n es el número de electrones atrapados en el estado m . Integrando (2.2) se tiene que:

$$I(t) = I_0 \exp(-t/\tau) \quad (2.3)$$

donde τ está dado en la ecuación (2.1), t es el tiempo e I_0 es la intensidad al tiempo $t=0$. La ecuación (2.3) representa el decaimiento fosforescente a temperatura constante una vez que el material se ha dejado de irradiar, esto es, cuando $t > t_r$ en la figura 2.2. A temperatura constante el decaimiento es exponencial

de primer orden.

Es obvio que en la práctica el decaimiento fosforescente no es exponencial. Una razón de este hecho es posiblemente el desarrollo simultáneo de procesos de primer orden tales que a una cierta temperatura varias trampas con diferentes valores de E son muestreadas. Una segunda razón que es detallada por Randall y Wilkins, se refiere a la posibilidad de que una vez liberado el electrón de la trampa m , éste pueda regresar a la misma trampa o se recombine en el estado base g . En este caso el número de recombinaciones es proporcional al número de electrones y también al número de sitios de recombinación. Por tanto suponiendo que ambas sean iguales se tiene que :

$$I(t) = -C \, dn/dt = \alpha n^2 \quad (2.4)$$

donde α es una constante a T constante. Integrando (2.4):

$$I(t) = I_0 (\alpha n_0 t + 1)^{-2} \quad (2.5)$$

Este tipo de decaimiento es llamado de segundo orden. La constante α está relacionada con la vida media descrita en la ecuación (2.1) y las posibles recombinaciones en la trampas y en el estado base g .

La ecuación (2.1) muestra que la vida media τ es exponencialmente dependiente de la temperatura. Para el fenómeno fosforescente la combinación de los valores E y T es tal que es

despreciable y puede observarse luminiscencia facilmente a la temperatura T_0 , a la que el proceso de irradiación toma lugar. En caso de que la trampa sea demasiado profunda los valores de E y T_0 son tales que $E > kT_0$ y por lo tanto el valor de τ es grande. Como consecuencia el electrón permanecerá atrapado en el nivel m indefinidamente o el rango de electrones expulsados será $dn/dt = -n/\tau$ demasiado pequeño a la temperatura T_0 . Por ejemplo, para una trampa de profundidad $E = 1.5$ eV y suponiendo $s = 10^{12} \text{seg}^{-1}$ se tiene que $\tau = 7.3 \times 10^5$ años a una temperatura de $T = 298$ °K. Prácticamente se dice que nunca será observada luminiscencia a esta o menor temperatura. Sin embargo, el fenómeno puede ser inducido elevando la temperatura. Si esta es elevada linealmente a una razón $\beta = dT/dt$ existirá un momento en el que $I(t) = n/\tau$ sea lo suficientemente grande para que el fenómeno se observe. Es claro que cuando se incrementa T , τ disminuye y consecuentemente la intensidad aumenta cuando electrones son expelidos de las trampas y la recombinación toma lugar. Debido a que existe un número limitado de trampas y electrones, éstos con su liberación al elevarse la temperatura, producirán una disminución en $I(t)$ creando la formación de un máximo o pico. Como la luminiscencia es estimulada por calentamiento, se nombra termoluminiscencia.

Un pico máximo termoluminiscente se muestra en la figura 2.2 y se compara con las curvas fluorescente y fosforescente. En esta figura la temperatura esta relacionada con el tiempo por $\beta = dT/dt$. De acuerdo con la profundidad de la

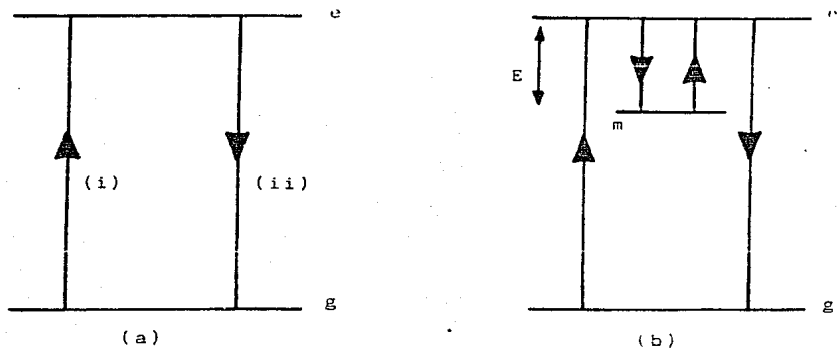


Figura 2.3. Transiciones energéticas envueltas en la producción de (a) fluorescencia y (b) fosforescencia.

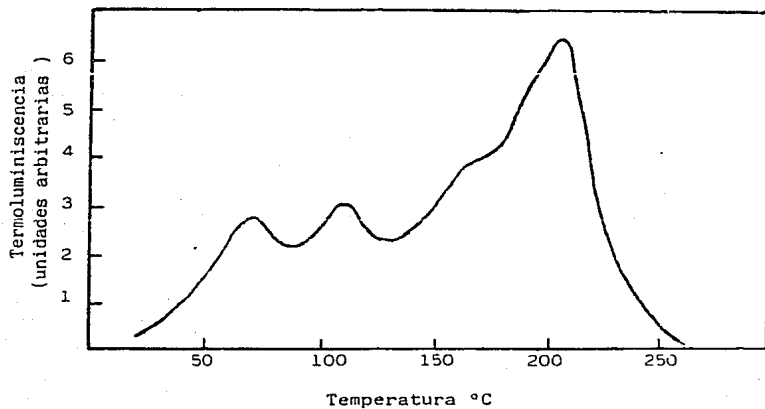


Figura 2.4. Curva de luz termoluminiscente de Fluoruro de Litio, LiF, dopado con Mg y Ti.

trampa, el fenómeno termoluminiscente puede ser obtenido después de que la irradiación cese.

La forma característica de mostrar el fenómeno termoluminiscente es graficando intensidad luminiscente como función de la temperatura, conocida como curva de luz. Una curva de luz típica es la del LiF, (Fluoruro de Litio), se muestra en la figura 2.4. Los picos que se observan indican la existencia de cuatro diferentes especies de trampas que son activadas a ciertos rangos de temperaturas, cada uno con su propio valor de E y s . El área de cada pico está relacionada con el número de trampas llenas las cuales, en orden, están relacionadas con la cantidad de radiación inicialmente impartida a la muestra.

Mediante esta simple descripción del proceso termoluminiscente es posible observar los elementos esenciales para el estudio de la termoluminiscencia que son el modelo de niveles energéticos en semiconductores; la absorción de la energía de la radiación creando una población de electrones atrapados; y la estimulación térmica que libera los electrones de las trampas con la consecuente recombinación y seguida de la emisión termoluminiscente. Aún más, es posible ver como una segunda irradiación del material es necesaria si el fenómeno termoluminiscente se desea inducir nuevamente.

El modelo antes tratado tiene sus orígenes en la teoría de bandas de sólidos a partir de la cual se puede obtener una explicación simple de las propiedades termoluminiscentes. Una

revisión del modelo de teoría de bandas nos permite tener una visión mas clara del proceso luminiscente.

2.2 Teoría de Bandas.

La solución de la ecuación de Schrodinger para electrones sujetos a un potencial periódico revela la existencia de bandas de energía permitidas; otros valores de energía diferentes de éstos representan zonas prohibidas. Un ejemplo de esta situación es el modelo de Kronig-Penny para un cristal(2).

La densidad de estados ocupados en cada banda permitida es descrita por la función:

$$N(E) = Z(E)f(E) \quad (2.6)$$

donde $f(E)$ es la función de distribución de Fermi-Dirac(3) descrita por:

$$f(E) = [1 + \exp\{(E-E_f)/KT\}]^{-1} \quad (2.7)$$

Donde $N(E)$ representa la densidad de niveles de energía ocupados, $Z(E)$ es la densidad de niveles de energía posibles, y E_f es el nivel de Fermi o potencial químico. De hecho esta ecuación es obtenida de la mecánica estadística desarrollada por Fermi-Dirac que describe la conducta estadística de los electrones libres en los metales y semiconductores. Esta distribución es de gran importancia ya que muchas de las propiedades eléctricas y térmicas de los sólidos, que no se pueden explicar o comprender mediante el uso de las estadísticas clásicas, se deducen como una consecuencia directa de la estadística de Fermi-Dirac. La

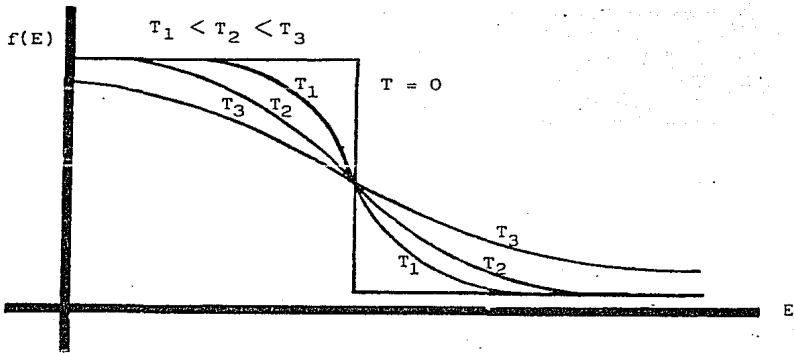


Figura 2.5. Representación esquemática de la función de distribución de Fermi para cuatro diferentes temperaturas. Obsérvese la variación de la energía de Fermi en relación a la temperatura tal como se muestra en la figura, la variación en cualquier sistema en particular depende críticamente de la función de densidad de estados del sistema.⁽³⁾

función de distribución de Fermi-Dirac se muestra en la figura 2.5 para varios valores de temperaturas. Al cero absoluto, aquellos niveles de energía por abajo de E_f están completamente llenos y aquellos por encima de E_f totalmente vacíos.

Para semiconductores o aisladores E_f está por encima de la máxima energía de valencia por lo que la banda de valencia está completamente llena. Lo anterior de hecho significa que no es posible obtener un transporte neto de carga en la banda de valencia en la dirección de un campo eléctrico aplicado. Estos materiales al cero absoluto son no conductores. Conducción eléctrica resultará solo cuando a los electrones de valencia se les de suficiente energía para sobrepasar la banda prohibida E_g , con el fin de alcanzar la siguiente banda, usualmente llamada banda de conducción. La conductividad del material σ , está caracterizada por tener una dependencia en la temperatura de la forma $\exp[-E_g/kT]$ donde σ tiende a cero cuando T tiende a cero. Aún más, para materiales ideales la absorción óptica solo llega a tener lugar cuando las frecuencias son mayores que E_g/h (con $h =$ constante de Planck). En el caso de que E_f , al cero absoluto, esté dentro de la banda de valencia, esto es $E_f < E_v$, se observará niveles energéticos parcialmente llenos y el material exhibirá conductividad metálica tendiendo σ a un valor distinto de cero cuando T tiende a cero.

Para una situación ideal en un semiconductor ó aislador $Z(E) = 0$ cuando $E_c > E > E_v$, donde E_c es la energía mínima en la

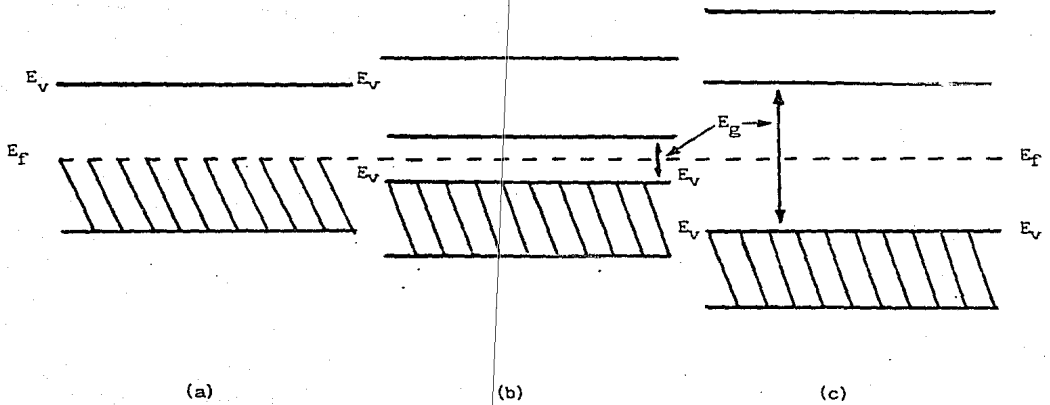


Figura 2.6. (a) Banda de valencia parcialmente llena para un metal al cero absoluto. El área sombreada representa los estados totalmente ocupados. Esto es comparado con la banda de valencia en (b) de un semiconductor y (c) de un aislador. Aquí las bandas llenas están separadas de la siguiente banda vacía por la llamada zona prohibida E_g . E_F es la posición del nivel de Fermi y E_V es el máximo de la banda de valencia.

banda de conducción, y E_v es la energía máxima en la banda de valencia. En caso de que ocurran defectos estructurales en el cristal o existan impurezas dentro de éste, se tendrá como consecuencia un rompimiento en la periodicidad del cristal y puede ser posible que electrones posean energías las cuales son prohibidas en el cristal perfecto. Un resultado de este fenómeno es la generación de nuevas bandas de absorción óptica, que en ocasiones dan al cristal una apariencia coloreada. Los tipos de imperfecciones que pueden ocurrir son muchos y muy variados y el proceso de crecimiento natural del cristal es un factor importante en la determinación del tipo de defecto predominante el material.

Comunmente los cristales son clasificados en iónicos, covalentes, metálicos y moleculares. En los cristales iónicos los electrones de valencia se transfieren de un átomo a otro, dando lugar a iones positivos o negativos. Los compuestos químicos que contienen átomos muy electronegativos o electropositivos son por ejemplo NaCl, KBr, LiF que tienden a formar cristales iónicos en estado sólido. Los cristales covalentes son aquellos en los que varios átomos comparten equivalentemente los electrones de valencia en lugar de transferirlos de unos a otros como sucede en los cristales iónicos. En éstos no se tiene una carga neta asociada en ninguno de los átomos del cristal. Un ejemplo típico del cristal covalente es el diamante, en el que cada átomo comparte sus

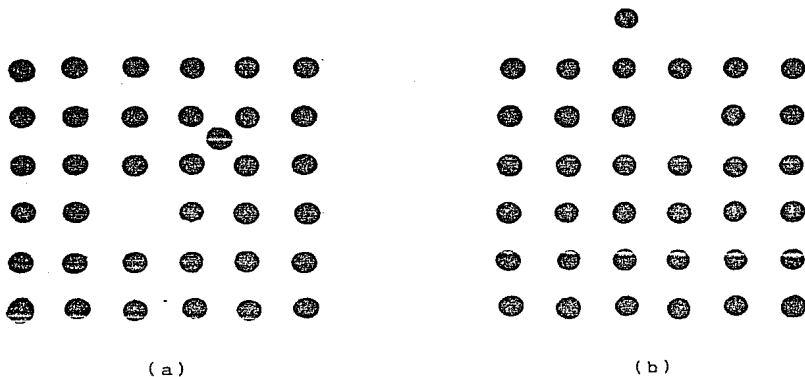


Figura 2.7. Defecto (a) de Frenkel y (b) de Schottky en un red cristalina⁽⁴⁾.

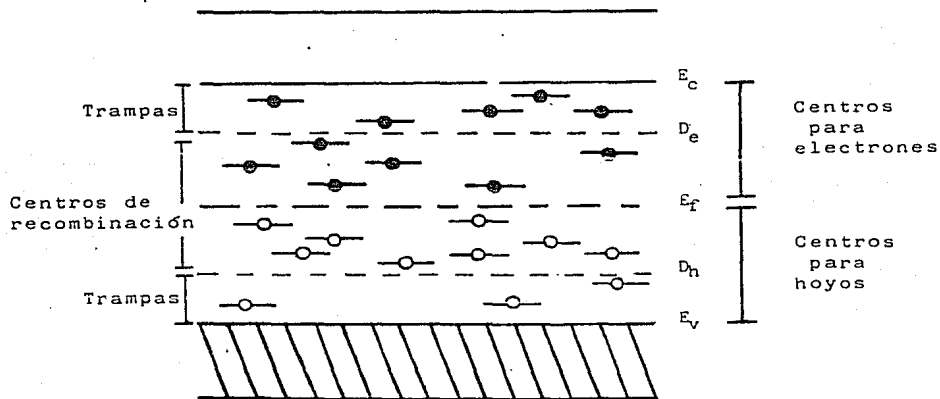


Figura 2.8. Niveles energéticos en un aislador en equilibrio al cero absoluto. Los niveles por debajo de E_f están llenos de electrones, mientras que aquellos que se encuentran por encima están vacíos.

cuatro electrones de valencia con sus cuatro vecinos más cercanos. Por otro lado, los elementos metálicos en estado libre forman cristales en los que están presentes electrones libres, lo que explica la elevada conductividad eléctrica y térmica que estos presentan. Los cristales moleculares son aquellos en los que el enlace entre átomos ó las fuerzas entre moléculas no es ni iónico ni covalente, sino que se origina exclusivamente en las fuerzas dipolares existentes entre los átomos y las moléculas.

Las posibles imperfecciones estructurales en las redes cristalinas tienen dos tipos básicos de vacantes de red. La primera son los denominados defectos de Frenkel donde un átomo de la red cristalina se desplaza a una posición intersticial dejando una vacante de red tras él. La segunda, llamada defecto de Schottky, consiste en que uno de los átomos de la región cercana a la superficie se pasa a un sitio de la superficie dejando una vacante móvil que puede difundirse hacia el interior del cristal. Estos efectos ocurren muy frecuentemente en los cristales iónicos donde un efecto u otro puede dominar.

En cristales moleculares predominan los defectos Schottky. Esto se debe a la dificultad para formar defectos intersticiales con las grandes moléculas. Mediante la incorporación de impurezas en el material puede dar lugar a distorsiones y éstos pueden traer como consecuencia la formación de defectos. Los defectos planares y lineales tales como dislocaciones y fronteras de grano pueden también dar lugar a niveles permitidos dentro de la banda

prohibida⁽⁴⁾. Las bandas de valencia y conducción extendidas a través del cristal donde los defectos están centrados dan como resultado los llamados niveles localizados de energía.

Los niveles de energía introducidos pueden ser discretos o distribuidos, esto depende de la naturaleza exacta del defecto y la impureza. En términos generales, un entendimiento de cómo las impurezas y defectos estructurales dan lugar a niveles localizados de energía puede obtenerse usando el ejemplo de los cristales Halogenuros Alcalinos M^+X^- . Un electrón liberado de la banda de valencia y vagando a través del cristal puede llegar a ser atrapado en sitios vacantes o de carga positiva, esto es, donde hace falta un ión X^- . La energía requerida para liberar al electrón de la trampa es menor que la requerida para liberar uno de la banda de valencia de un ión X^- . La vacancia tiene asociada una energía que se encuentra entre las bandas de valencia y conducción. Una situación similar sucede con las vacancias M^+ que resultan de una diferencia de carga positiva resultando como consecuencia en una disminución en la energía requerida para liberar un electrón de un ión X^- vecino. Una vez más una energía localizada entre las bandas de valencia y conducción es asociada con esta vacancia. La posición del nivel de energía entre las bandas es determinado por la disminución en la energía requerida para liberar un electrón. Para las vacancias X^- el nivel de energía resulta estar por debajo del nivel de Fermi. Estos centros son considerados como trampas potenciales para hoyos. Las

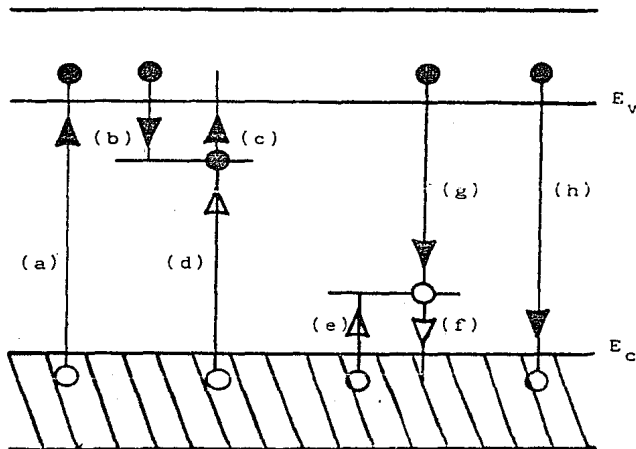


Figura 2.9. Transiciones electrónicas comunes en materiales cristalinos semiconductores y aisladores: (a) Ionización; (b) y (e) captura de un electrón y un hoyo respectivamente; (c) y (f) liberación de un electrón y un hoyo; (d) y (g) recombinaciones indirectas; (h) recombinaciones directas. Electrones, círculos negros; transiciones de electrones, flechas negras; hoyos, círculos blancos; transiciones de hoyos, flechas blancas.

vacancias M^+ tienen su nivel de energía por encima del nivel de Fermi y carecen de electrones por lo que son trampas potenciales para electrones. Argumentos similares se pueden aplicar cuando incorporamos impurezas a un cristal. El diagrama de niveles de energía para un semiconductor conteniendo trampas para hoyos y electrones es mostrado en la figura 2.8.

La teoría de bandas para materiales cristalinos fue desarrollada usando el concepto de una red periódica semi-infinita dando lugar a potenciales periódicos. De hecho en materiales no cristalinos tal concepto claramente no se puede aplicar debido a la no existencia de intervalos periódicos en el potencial resultando en fluctuaciones azarosas. Mediante la limitación de la amplitud de las fluctuaciones, una solución a la ecuación de Schrodinger puede ser obtenida lo que indica que zonas permitidas existen, cada una separada por una zona prohibida(5).

2.3 Trampas y Centros de Recombinacion

Una característica esencial del proceso luminiscente es el cambio en los estados ocupados por los diversos niveles de energía. Diferentes tipos de transiciones son posibles tanto para electrones como para hoyos. La figura 2.9 muestra algunas de estas posibles transiciones.

La transición (a) es la excitación de un electrón de la banda de valencia a la banda de conducción en donde este se mueve

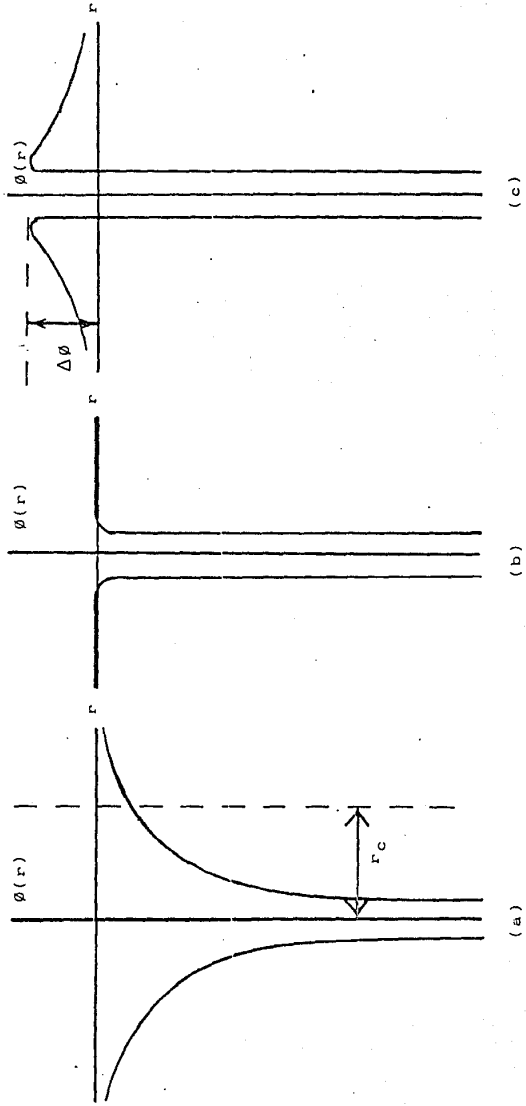


Figura 2.10. Representación esquemática de la distribución de potenciales $\phi(r)$ en centros de defectos. (a) Atractivo coulombiano; (b) neutral; (c) repulsivo coulombiano.

libremente a través de la red. Esta transición corresponde a la absorción de energía por alguna fuente externa, tales como la radiación. Por cada electrón libre en la banda de conducción un hoyo libre es dejado atrás en la banda de valencia. De esta forma, la ionización crea pares de electrón-hoyo los cuales pueden vagar por el cristal hasta que sean localizados por las trampas. Como resultado es que los electrones y los hoyos son atrapados (transición (b) y (e) respectivamente). Los electrones y hoyos atrapados pueden liberarse de sus trampas por medio de excitación óptica (transición (c) y (f) respectivamente) y de nuevo se pueden mover libremente por el cristal.

Una segunda opción para los electrones y hoyos es que se pueden combinar con un transportador de carga del signo opuesto, ya sea directamente (transición (h)), o indirectamente mediante el previo llenado de las trampas (transiciones (d) y (g)). Si alguno de éstos es acompañado por la emisión de luz entonces se provoca el fenómeno luminiscente.

Lo anterior expresa que los niveles localizados de energía pueden actuar como trampas o centros de recombinación. Es conveniente determinar que distingue a un centro de recombinación de una simple trampa. La clasificación que es usada para distinguir entre los dos tipos está basada sobre las probabilidades relativas de recombinación y excitación térmica. En la figura 2.9 se observa que si la transición (c) es más probable que la transición (d), entonces el centro es clasificado

como trampa. Por otro lado, si la transición (d) es más probable que la transición (c), entonces es clasificado como centro de recombinación. Esto es similar para los hoyos y las transiciones (g) y (f).

La ecuación (2.1) expresa la probabilidad de que un transportador de carga sea liberado térmicamente de su trampa está relacionado exponencialmente con el valor de E/kT , donde E es la profundidad de la trampa. Para una temperatura dada, aquellos centros de baja energía son más probables de ser trampas que centros de recombinación. Por esta razón los centros de recombinación están localizados cerca de la parte media de la banda prohibida y las trampas están localizadas cercanamente a los niveles de valencia y conducción. Aún más se puede ver como un centro, que es una trampa a una cierta temperatura, puede llegar a convertirse en un centro de recombinación a una temperatura mas baja y viceversa.

La distinción entre trampas y centros de recombinación basada en las probabilidades relativas de recombinación y atrapamiento, da la posibilidad de que, a una temperatura dada, existirá un nivel de defectos para los cuales estas probabilidades de transición sean iguales. Para tal nivel de profundidad D , éste representará un nivel de demarcación entre las trampas y los centros de recombinación. Esto lleva a considerar si un centro de profundidad E , donde $E < D$ será una trampa, y si $E > D$ este centro será un centro de recombinación.

Debido al hecho de que D se refiere a la diferencia de energías entre el nivel de localizaciones y la banda asociada se tendrá un nivel de demarcación tanto para electrones como para centros de recombinación. Esto es que la banda de conducción tendrá un nivel de demarcación, D_e para los electrones y la banda de valencia un nivel D_h para los hoyos (ver figura 2.8).

La distinción entre una trampa y un centro de recombinación no solamente depende de la profundidad del centro. De la definición de nivel de demarcación es posible escribir tanto para los electrones como para los hoyos las siguientes expresiones :

$$s_e \exp[-D_e/kT] = n_r r_A^P \quad (2.8)$$

para los electrones, y

$$s_h \exp[-D_h/kT] = p_r r_A^P \quad (2.9)$$

para los hoyos.

Estas ecuaciones representan en su parte izquierda, la probabilidad por unidad de tiempo de excitación térmica de los electrones y hoyos atrapados respectivamente en los niveles de demarcación tanto de los electrones, como de los hoyos. s_e y s_h son constantes que van de acuerdo a la ecuación (2.1). La parte derecha de las ecuaciones representa la probabilidad por unidad de tiempo de recombinación de un portador de carga con una carga libre del signo opuesto. n_r y p_r son las densidades de cargas atrapadas, y r_A^N y r_A^P son los coeficientes de transición de

recombinación tanto para los electrones y para los hoyos respectivamente. Debe tomarse en cuenta que se está suponiendo la existencia de un nivel D tanto para los electrones como para los hoyos en que las probabilidades de transición son iguales (de ahí la igualdad de las ecuaciones anteriores). Las unidades de r_{A^n} y r_{A^p} son volumen/unidad de tiempo. La parte izquierda de las ecuaciones (2.8) y (2.9) dan las probabilidades de transición (c) y (f) en la figura 2.9 y la parte derecha de éstas dan las probabilidades de transición (d) y (g). Ciertos autores⁽⁶⁾ igualan los coeficientes de transición r_{A^n} y r_{A^p} con los productos $v r_{\sigma^n}$ y $v r_{\sigma^p}$ respectivamente, donde v es la velocidad térmica de los portadores de carga libre en las bandas de valencia o conducción y r_{σ^n} y r_{σ^p} son las secciones eficaces para la captura de una carga libre (ya sea electrones u hoyos). Ahora, dada una concentración de cargas atrapadas, es el valor de la sección eficaz de captura quien determina la probabilidad de recombinación. El valor de la sección eficaz de captura depende de la distribución del potencial en la región del defecto. Tres tipos de potenciales son considerados por ciertos autores⁽⁷⁾ para la estimación de secciones eficaces. Los tipos de potencial pueden ser atractivos (coulombianos), neutros, o repulsivos. Las variaciones de potencial para los tres casos se muestran en la figura 2.10. En el caso de la atracción coulombiana, 2.10a, se puede definir un radio r_c , al cual la energía de amarre debida a la fuerza coulombiana sea igual a la energía cinética θ del

portador. Por tanto, al punto r_c se tiene que:

$$\theta = q^2/r_c\epsilon \quad (2.10)$$

donde q es la carga electrónica y ϵ es la constante dieléctrica.

La sección eficaz de captura es por lo tanto:

$$\sigma = \pi r_c^2 = \pi(q^2/\theta\epsilon)^2 \quad (2.11)$$

Una consecuencia del análisis anterior es que la sección eficaz de captura para trampas atractivas y centros de recombinación deberá ser dependiente de la temperatura. La energía cinética de los portadores libres es aproximadamente $3kT/2$ y por lo tanto σ será proporcional a T^{-2} . En ecuaciones del tipo (2.8) y (2.9) la dependencia en T^{-2} de σ es usualmente ignorada comparada con la dependencia $\exp[-E/kT]$ de la probabilidad de liberación. Aún así, a muy bajas temperaturas, existe evidencia en T^{-2} para ciertos materiales tales como germanio⁽⁸⁾.

Para la captura de un portador por un centro coulombiano repulsivo (figura 2.10c) deberá ser vencida una barrera de potencial $\Delta\phi$ y así dar lugar a la captura. Solamente son necesarios pequeños valores de $\Delta\phi$ para reducir la sección eficaz de captura en varios ordenes de magnitud. La sección eficaz de captura para una trampa neutral es similar al centro atractivo coulombiano, excepto que el potencial varía como r^{-4} . Este potencial resulta de la interacción entre la carga del portador y la polarización del centro del cristal⁽⁹⁾.

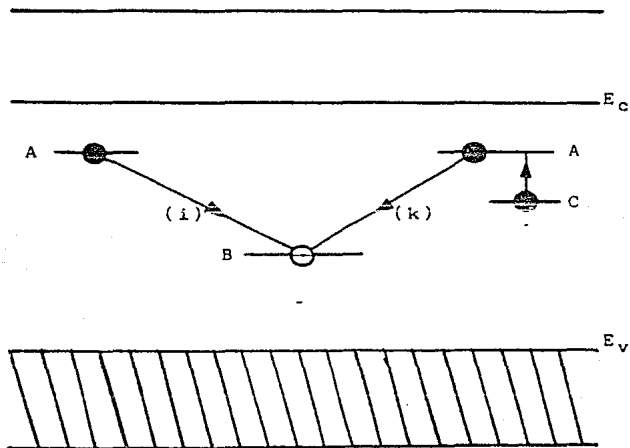


Figura 2.11. Transiciones de electrones en un semiconductor donde no se realiza mediante el uso de las bandas de valencia ni de conducción. Electrones, círculos negros; hoyos, círculos blancos; transiciones electrones, flechas negras.

Debido a que un centro es atractivo para portadores de carga de un signo, este puede ser neutral o repulsivo para aquellos portadores del signo opuesto; cada centro es caracterizado por dos secciones eficaces de captura, una para electrones y otra para hoyos. Esto es, que las magnitudes relativas de estas secciones eficaces son las que determinan el comportamiento del centro en el proceso de atrapado y recombinación. La naturaleza repulsiva o atractiva de un centro esta relacionada a su estado de carga. En el análisis del proceso de atrapado y recombinación de electrones y hoyos en semiconductores, ciertos autores⁽¹⁰⁾ consideran que la carga de un centro tendrá dos valores, uno para electrones y otro para hoyos, diferenciando en una unidad de carga. Por lo tanto, en el proceso de atrapado y recombinación de carga, transiciones de carga entre centros envuelven transiciones entre estados de carga. La captura de un electrón (o liberación de un hoyo) significa que el centro tiende a ser más negativo, y por lo tanto es menos probable que atraiga a un electrón adicional. Similarmente la captura de un hoyo (o la liberación de un electrón) crea los centros más positivos (o menos negativos) y reduce la probabilidad de atraer a otro hoyo a la misma localidad.

Hasta ahora la discusión ha sido acerca de las transiciones que envuelven las bandas delocalizadas. Por ejemplo, en la figura 2.9 la transición (c) incluye la excitación de un electrón desde un centro hacia la banda de conducción, por otro lado la

transiciones (b) y (g) requieren la captura, por los centros, de electrones desde la banda de conducción. Las transiciones (d), (e) y (f), de la misma manera, involucran transiciones de hoyos dentro y fuera de la banda de valencia. De cualquier forma, en muchos materiales las transiciones de electrones y hoyos pueden ocurrir directamente entre centros sin que los portadores sean elevados a la banda de conducción y de valencia. En varios fósforos, transiciones de este tipo son importantes en el proceso luminiscente.

La figura 2.11 ilustra el tipo de transiciones centro-centro que pueden llegar a ocurrir, por simplicidad solamente transiciones de electrones son representadas. Así mismo también transiciones de hoyos pueden ocurrir. Un electrón atrapado al nivel A puede recombinarse directamente con un hoyo atrapado al nivel B (transición (1)). Una recombinación de esta naturaleza puede llegar a ocurrir si los niveles de energía A y B son localizados en el mismo átomo. Un ejemplo clásico de este tipo de recombinación es la luminiscencia provocada en Cloruro de Potasio dopado con Talio, cuando un electrón del estado $3P_1$ en Talio decae al estado base $1S_0$ con la consecuente emisión de luz con longitud de onda de $305 \text{ nm}^{(11)}$.

Las tierras raras en particular son buenos ejemplos de substancias las cuales exhiben este tipo de recombinaciones. Cuando estas son incorporadas como dopantes en diferentes tipos de redes cristalinas, puede inducirse luminiscencia la cual es

primordialmente una característica de la tierra rara usada, y no del material dopado⁽¹²⁾. La capa incompleta 4f en los iones de las tierras raras resulta en un número de líneas de emisión luminiscente bien definidas causadas por transiciones entre el ancho intervalo de bajos niveles de energía. Los electrones de la capa 4f son eficazmente cubiertos de sus vecinos por las capas 5s² y 5p⁶. Por lo tanto los estados 4f no son afectados por los iones vecinos del elemento dopado y consecuentemente el espectro de emisiones permanecerá esencialmente invariante en la mayoría de los cristales dopados. Las transiciones son normalmente radiativas con el resultado de que las tierras raras como dopadores se han incrementado en popularidad en la fabricación de fósforos luminiscentes.

Considerando la figura 2.11, si los niveles A y B no están dentro del mismo arreglo atómico, una transición del tipo (i) puede aún tomar lugar mediante el fenómeno de túnel, si los defectos responsables de los niveles están situados muy cerca uno del otro en el cristal dopador. Este tipo de recombinaciones es conocida por ser importante en una variedad de materiales orgánicos e inorgánicos⁽¹³⁾.

Una posible alternativa es que un electrón tenga que ser elevado a un nivel de energía superior antes de que la recombinación tome lugar con el hoyo atrapado. Por lo tanto, en la figura 2.11, un electrón en el nivel C tiene que ser elevado hasta A (transición(j)) antes de que la recombinación tome lugar

(transición (k)).

Una consecuencia del hecho de que las transiciones de los electrones de este tipo no involucren la banda de conducción, es que no existirá un fenómeno de conductividad relacionado. Por otro lado transiciones del tipo mostrado en la figura 2.9 serán asociadas con cambios en la conductividad del material.

2.4 Procesos de Recombinación

Todo fenómeno luminiscente está gobernado por el proceso de recombinación electrón-hoyo. De las figuras 2.9 y 2.11 tres tipos distintos de transiciones de recombinación pueden ser posibles, llamadas banda-banda (transición (h)), banda-centro (transiciones (d) y (g)), y centro-centro (transiciones (i) y (k)). Las recombinaciones banda-banda son llamadas recombinaciones directas. Por otro lado recombinaciones que involucran los niveles localizados son llamadas recombinaciones indirectas. Aún más, con el fin de que luminiscencia resulte, la recombinación deberá estar acompañada por la emisión de un fotón, esto es, que deberá ser radiativa.

Recombinaciones Directas e Indirectas:

La emisión luminiscente que resulta de la recombinación de electrones libres y hoyos directamente a través de la zona prohibida ha sido observada en una variedad de materiales. En CdS, por ejemplo, la inyección eléctrica de electrones libres y

hoyos resulta en la emisión luminiscente (electroluminiscencia) con longitud de onda aproximada a los 520 nm. a 300 K. La longitud de onda tiende a ser más corta cuando la temperatura se reduce. La emisión que se observa en CdS es el resultado de una transición directa del tipo (h) (figura 2.9) se ve que tiene la misma dependencia con la temperatura que el proceso (a). Recombinaciones banda-banda pueden ocurrir en dos formas: (i) si el mínimo de la banda de conducción y el máximo de la banda de valencia concurren con el mismo vector de onda, entonces la transición puede llegar a ocurrir sin transferencia de momento y por tanto el proceso tiene relativamente una alta probabilidad; (ii) si el fenómeno ocurre con diferentes vectores de onda y por tanto hay transferencia de momento que da a la transición banda-banda una baja probabilidad. Materiales en los que los extremos de las bandas coinciden (i) son llamados materiales directos, mientras que los del tipo (ii), los más numerosos, son llamados materiales indirectos.

La dependencia en la temperatura del tiempo de vida de un transportador de carga para una recombinación directa (esto es el tiempo promedio que un electrón permanece en la banda de conducción antes de que una recombinación directa con un hoyo libre en la banda de valencia ocurra) ha sido determinada por varios autores⁽¹⁴⁾. El tiempo de estancia viene dado por:

$$\tau_r = n_1/2R \quad (2.12)$$

donde n_i es la densidad intrínseca de electrones libres y R es la razón de recombinación directa (dependiente de la temperatura) donde R puede ser escrita como:

$$R = \sigma n_i^2 v \quad (2.13)$$

donde σ es la sección eficaz de recombinación directa. Es claro que a bajas temperaturas la recombinación banda-centro sea más probable. A altas temperaturas se espera que el tiempo de vida τ_r sea aquel esperado en las transiciones banda-banda.

La introducción de impurezas y otros defectos en la red resulta en la emisión luminiscente con longitud de onda mayores que aquellos que se esperan en las transiciones de la banda de conducción a la de valencia. Lo anterior muestra un cambio de recombinaciones directas (banda-banda) hacia recombinaciones indirectas (banda-centro o centro-centro). Esto es claro ya que se esta considerando que en las transiciones banda-banda hay una transferencia considerable de momento así como de energía. Los electrones y hoyos libres deben encontrarse directamente con velocidades opuestas con el fin de conservar momento.

La cinética de las recombinaciones indirectas que incluyen electrones y hoyos libres (transiciones (d) y (g) en la figura 2.9) fueron previamente formuladas por Shockley y Read en 1952⁽¹⁵⁾. Un importante rasgo de estas recombinaciones es que los transportadores de carga excitados pueden recombinarse con transportadores de carga atrapados del signo opuesto. Por tanto

el tiempo de vida antes que la recombinación tome lugar, es dependiente de la densidad de transportadores de carga excitados, de la temperatura y de la densidad de centros de recombinación.

Recombinaciones Radiativas y No-Radiativas:

En una transición directa sería muy improbable que la energía de un transportador de carga pueda ser disipada totalmente mediante la producción de fonones (lo que resultaría en una transición no-radiativa). El electrón excitado debe perder una cantidad de energía correspondiente a la separación de la bandas y esto necesitaría la creación simultánea de muchos fonones con el fin de disipar la energía del electrón. Por esta razón, las transiciones directas envuelven la emisión de fotones y por lo tanto son radiativas.

La energía disipada en una transición indirecta es mucho menor que la energía entre bandas y puede ser disipada ya sea radiativamente (vía fotones) o no radiativamente (vía fonones). La energía puede ser también removida vía colisiones Auger, pero no existe prueba experimental aun de este fenómeno que es teóricamente probable⁽¹⁵⁾.

Un material exhibirá o no luminiscencia, después de haber sido irradiado y absorbido energía, dependiendo de las posibilidades relativas de las transiciones radiativas y no radiativas. En general la eficiencia luminiscente de un fósforo, η , es relacionada con la probabilidad de transición luminiscente,

P_r , y la probabilidad de una transición no radiativa P_{nr} por :

$$\eta = P_r / (P_r + P_{nr}) \quad (2.14)$$

Varias medidas experimentales de η en una variedad de materiales han mostrado que η es fuertemente dependiente en ciertos intervalos de temperatura. Generalmente la eficiencia permanece razonablemente constante hasta una temperatura crítica después de la cual la eficiencia decrece rápidamente. El sistema KCl:Tl es un buen ejemplo (figura 2.12). La emisión de fotones de 305 nm. por este material se debe a la recombinación indirecta del tipo mostrado en la figura 2.11.

Las transiciones de electrones entre un estado excitado y un estado base en el mismo arreglo atómico (transiciones delocalizadas) pueden ser representadas en la forma mostrada en la figura 2.13⁽⁵⁾. Esta muestra el arreglo configuracional de los átomos en las cercanías de un defecto en la red, que en el equilibrio, esto es, en el estado base, el electrón se encontrará en un mínimo de energía (punto A). La absorción de la energía de la radiación resulta en una transición a un estado excitado más alto, B, sin un ajuste en la configuración. En el estado excitado el electrón deberá alcanzar un mínimo de energía en la configuración energética mediante la pérdida de cierta cantidad de energía E_1 . El electrón podrá alcanzar el estado C cuando la energía E_1 sea disipada en forma de calor. La transición CD

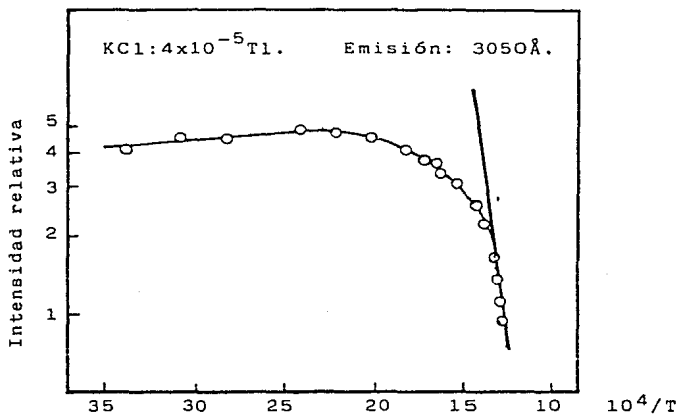


Figura 2.12. Ejemplo de aniquilamiento térmico en KCl:Tl⁽¹¹⁾.

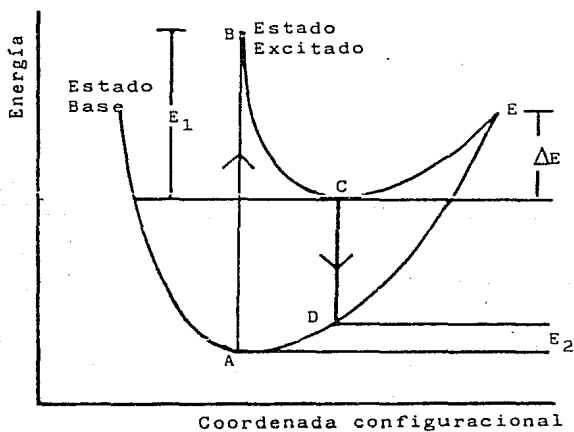


Figura 2.13. Posibles variaciones en la energía de un electrón con las coordenadas configuracionales para los estados base y estado excitado en un semiconductor y/ó aislador.

resulta en una emisión luminiscente seguida de un arreglo en el espacio configuracional del estado base mediante la pérdida de energía E_2 disipada en forma de calor y con el consecuente retorno al punto A del estado base. De este diagrama se puede ver que la energía luminiscente CD es menor que la energía absorbida AB en una cantidad $E_1 + E_2$. Por lo tanto las bandas de emisión son de larga longitud de onda en comparación con las bandas de absorción.

Una ruta adicional por la que un electrón excitado pueda retornar a su estado base es sugerida en el diagrama de configuraciones. Si el electrón absorbe una cantidad de energía ΔE estando éste en el estado excitado, una transición de C a E puede llegar a ocurrir. El electrón puede transferirse fácilmente al estado base sin la necesidad de emitir radiación, pero solamente mediante la disipación de la energía en la forma de calor. Esto causará el retorno al estado A del electrón.

De acuerdo con esto se puede ver que la probabilidad de una transición no radiativa P_{nr} (ecuación 2.12) esta relacionada con la temperatura por el factor de Boltzmann $\exp[-\Delta E/kT]$. La probabilidad de radiación P_r no es afectada por la temperatura por lo que podemos reescribir la ecuación (2.9) como:

$$\eta = 1/(1 + c \exp[-\Delta E/kT]) \quad (2.14)$$

donde c es una constante.

Estas consideraciones proveen de una explicación a la

dependencia en la temperatura de la eficiencia luminiscente en la figura 2.12(11).

CAPITULO 3

MODELOS TERMOLUMINISCENTES

Muchos fósforos exhiben un incremento en su conductividad eléctrica durante la absorción de la energía de la radiación. Cuando estas sustancias son excitadas, ya sea por luz ultravioleta o luz visible, se induce una disminución en la resistividad del material. Este fenómeno, comunmente llamado fotoconductividad, es parte de uno más general que incluye efectos similares, como los producidos por las radiaciones nucleares en las bandas prohibidas de los semiconductores y aisladores. Este fenómeno generalizado es llamado conductividad inducida por radiación. Al principio de este siglo ya se había supuesto la existencia de una relación cercana entre el fenómeno de conductividad y la luminiscencia de donde llegó a ser evidente que la fotoconductividad es producida por la liberación de cargas durante el proceso luminiscente. Estas ideas fueron fundamentales para establecer el modelo de bandas de energía que dan una interpretación al fenómeno luminiscente. Este modelo es especialmente útil ya que proporciona un entendimiento de los procesos que involucra el transporte de carga electrónica a través de la red cristalina. Ahora los fenómenos de recombinación y atrapamiento descritos anteriormente serán útiles para discutir los mecanismos posibles del fenómeno termoluminiscente.

3.1 Modelo Simple

Los primeros fósforos sintéticos disponibles eran en forma de polvo y por este hecho los experimentos que predicen las interrelaciones entre la fotoconductividad y termoluminiscencia no pudieron realizarse sino hasta que fue posible el uso de cristales de tamaño considerable. Aún así los tratamientos teóricos de la luminiscencia fueron basados en el modelo de bandas y esto fué aceptado hasta los trabajos de Randall y Wilkins^(1a,b), Garlick y Wilkins⁽¹⁶⁾, y Garlick y Gibson⁽¹⁷⁾.

El modelo discutido por estos autores es mostrado en la figura 3.1. En este esquema solo hay dos niveles localizados de energía. Uno está situado entre el nivel de demarcación y la banda. Esto es entre D_e y E_c , o entre D_h y E_v en la figura 3.1; y el otro situado en alguna parte entre D_e y D_h . De esta forma un nivel actúa como trampa (sea T) y el otro actúa como centro de Recombinación (sea R). En la figura 3.1 la trampa está situada arriba del nivel de Fermi E_f , y por lo tanto está libre en el estado de equilibrio. Esto es antes de absorber la energía de la radiación. Es por esto que es considerado como una trampa potencial de electrones. El centro de recombinación está situado por debajo del nivel de Fermi y está lleno de electrones lo que representa una trampa potencial de hoyos.

La absorción de la energía de la radiación ($h\nu > E_c - E_v$) resulta en la ionización de los electrones de valencia, que por tanto resulta en la producción de electrones libres en la banda

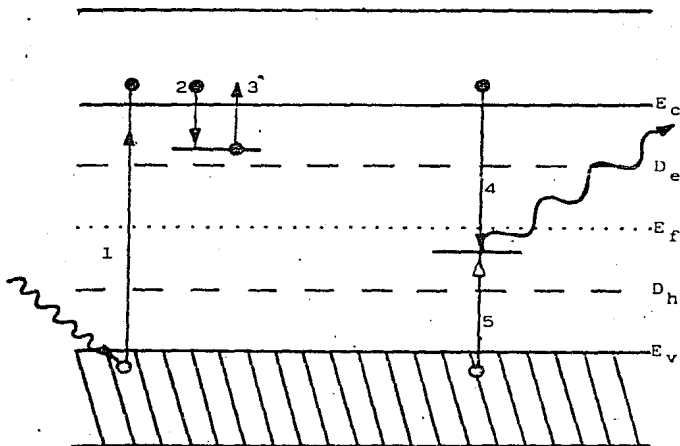


Figura 3.1. Modelo simple de 2 niveles para el fenómeno termoluminiscente. Transiciones permitidas: (1) ionización; (2) y (5) captura o atrapamiento; (3) liberación térmica; (4) recombinación radiativa y emisión de luz. Los electrones son los transportadores de carga activos, pero una situación análoga sucede para los hoyos. Electrones, círculos negros; transiciones de electrones, flechas negras; hoyos, círculos blancos; transiciones de hoyos, flechas blancas.

de conducción y hoyos en la banda de valencia (transición 1). Los transportadores de carga libre (electrones y hoyos), pueden recombinarse uno con otro, llegar a ser atrapados o permanecer libres en las respectivas bandas de valencia y conducción. Lo último implica el posible aumento en la conductividad del material.

Como se discutió anteriormente la recombinación directa de los electrones y hoyos libres a través de la banda prohibida es el proceso menos probable en comparación con el proceso indirecto. Con el fin de que el proceso de recombinación ocurra primero los hoyos deberán ser atrapados en centros R (transición 5). La recombinación toma lugar cuando se aniquilan un hoyo atrapado y un electrón libre (transición 4). Si se supone que en este modelo la transición de recombinación es radiativa se tendrá como resultado la luminiscencia.

El electrón libre también puede llegar a ser atrapado en el nivel (T) (transición 2). en este caso la recombinación solamente puede ocurrir si los electrones atrapados absorben la suficiente energía para ser liberados y pasar a la banda de conducción, de donde la recombinación puede llegar a tomar lugar. De aquí se ve que el fenómeno luminiscente es retrasado por una cantidad que es gobernada por el tiempo τ que es el tiempo en que los electrones están retenidos en las trampas. Este tiempo está dado por la ecuación (2.1) que puede ser reescrita como:

$$p = \tau^{-1} = s \exp[-E/kT] \quad (3.1)$$

Aquí p representa la probabilidad por unidad de tiempo de que un electrón sea liberado de una trampa.

Si la trampa de profundidad E es tal que a una temperatura T_0 de irradiación $E \gg kT_0$, da a lugar que cualquier electrón que sea atrapado permanecerá atrapado indefinidamente. Aún después de haber removido la fuente de irradiación existirán poblaciones de electrones atrapados. Como los electrones y hoyos son creados en pares y aniquilados en pares, debe existir la misma población de hoyos al nivel R . Debido a que el nivel de Fermi E_f está situado debajo de T y arriba de R , estas poblaciones de electrones y hoyos representan un estado de desequilibrio. Los mecanismos de reacción para el retorno al equilibrio están abiertos, pero debido a que se ha irradiado el material y perturbado de su estado de equilibrio a una temperatura tal que es baja en comparación de E/k , la rapidez de liberación, que está determinada por la ecuación (3.1), será muy baja. Es por lo tanto que este desequilibrio es caracterizado como metaestable, y existirá indefinidamente.

El retorno al equilibrio puede ser acelerado mediante el aumento de la temperatura del material por encima de T_0 tal que $E \leq kT$, es claro que el fenómeno está gobernado por los parámetros E y s . Esto resultará en un incremento en la probabilidad p de liberación y los electrones podrán ser llevados de la trampa a la banda de conducción. El fenómeno termoluminiscente resultará cuando los electrones libres se recombinen con los hoyos

atrapados.

La intensidad $I(t)$ a cualquier tiempo durante el proceso de calentamiento es proporcional a la razón de recombinación de hoyos y electrones al nivel R. Si n_h es la concentración de hoyos atrapados se tiene que:

$$I(t) = - dn_h/dt \quad (3.2)$$

La figura 3.2 muestra esquemáticamente la relación $I(t)$ y n_h . Cuando la temperatura se eleva, los electrones son liberados y toma lugar la recombinación reduciéndose así la concentración de hoyos atrapados incrementándose la intensidad termoluminiscente.

Cuando las trampas de los electrones son vaciadas progresivamente la razón de recombinación decrece y así mismo la intensidad termoluminiscente. Lo anterior es lo que produce el pico característico termoluminiscente. En la figura 3.2 se muestra la intensidad termoluminiscente en función del tiempo, en la mayoría de los experimentos la temperatura es elevada como una función lineal del tiempo. Esto es:

$$T = T_0 + \beta t \quad (3.3)$$

donde β es definida como la razón de calentamiento dT/dt .

Debido a que la probabilidad de liberación de un electrón de una trampa depende de la profundidad de ésta y de la temperatura (ver ecuación (3.1)), el intervalo de temperatura en que el pico

termoluminiscente aparezca está relacionado con la profundidad de la trampa. De hecho la posición del máximo termoluminiscente está determinada por la combinación E y s . Dada una s , se puede esperar que a mayores valores de E mayores valores de T_m (ver figura 3.2) al cual el pico ocurre. Es de esta forma mediante la cual un experimento en buenas condiciones puede proveer de información relacionada con la distribución de trampas en un cristal.

Con el fin de obtener información de las posiciones de los centros de recombinación, es necesario hacer retroceder o invertir las medidas obtenidas del espectro termoluminiscente. La energía de la luz emitida $(h\nu)_e$ (figura 3.1) es controlada por la diferencia entre el estado excitado o banda de valencia y el centro de recombinación o estado base. el procedimiento usual es el de realizar una búsqueda de longitud de onda dada una cierta temperatura o un pequeño intervalo de temperatura. Durante la pasada decada ciertos dispositivos fueron diseñados con la capacidad de dar gráficas tridimensionales $I-T-\lambda$ (18,19,20). Las gráficas 3.3 dan un ejemplo del tipo de curvas obtenibles.

El modelo anteriormente descrito en la figura 3.1 es el más simple que puede ser usado para explicar el fenómeno termoluminiscente. En este modelo, dos niveles de energía son el mínimo número necesario para describir el mecanismo del fenómeno termoluminiscente. El modelo de un material real puede ser tan complejo que sería necesario un estudio más detallado de las

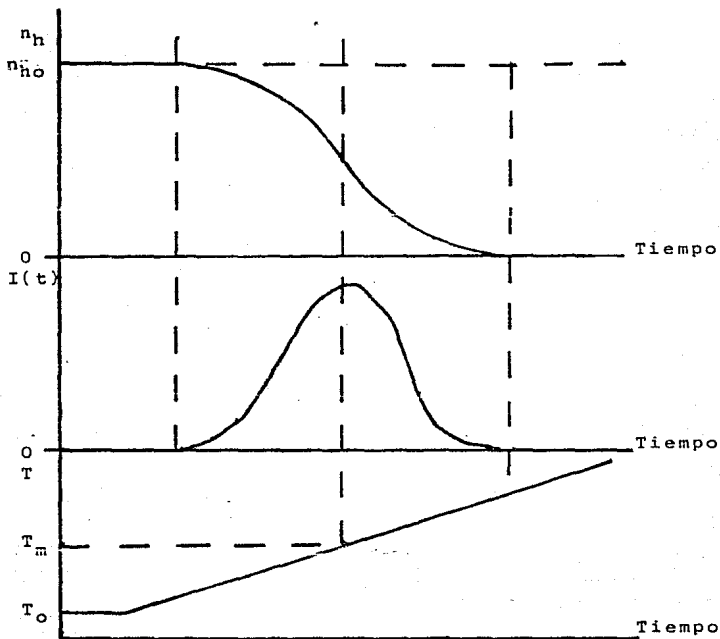
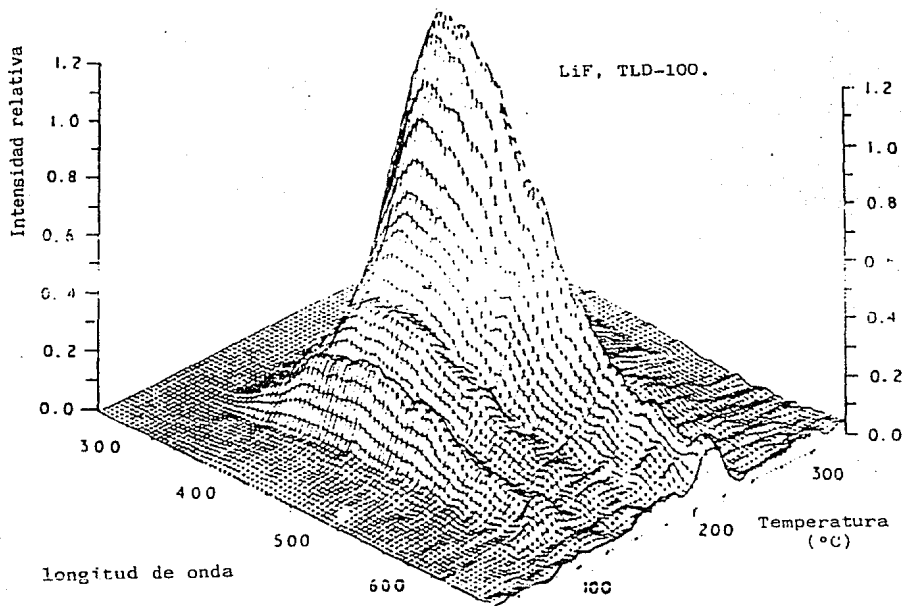
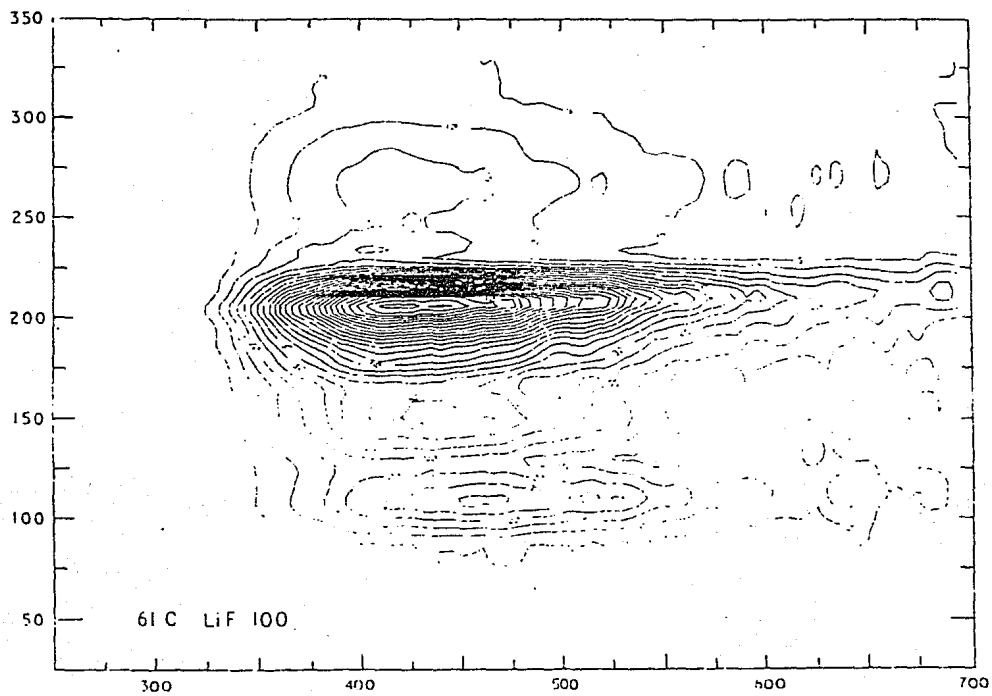


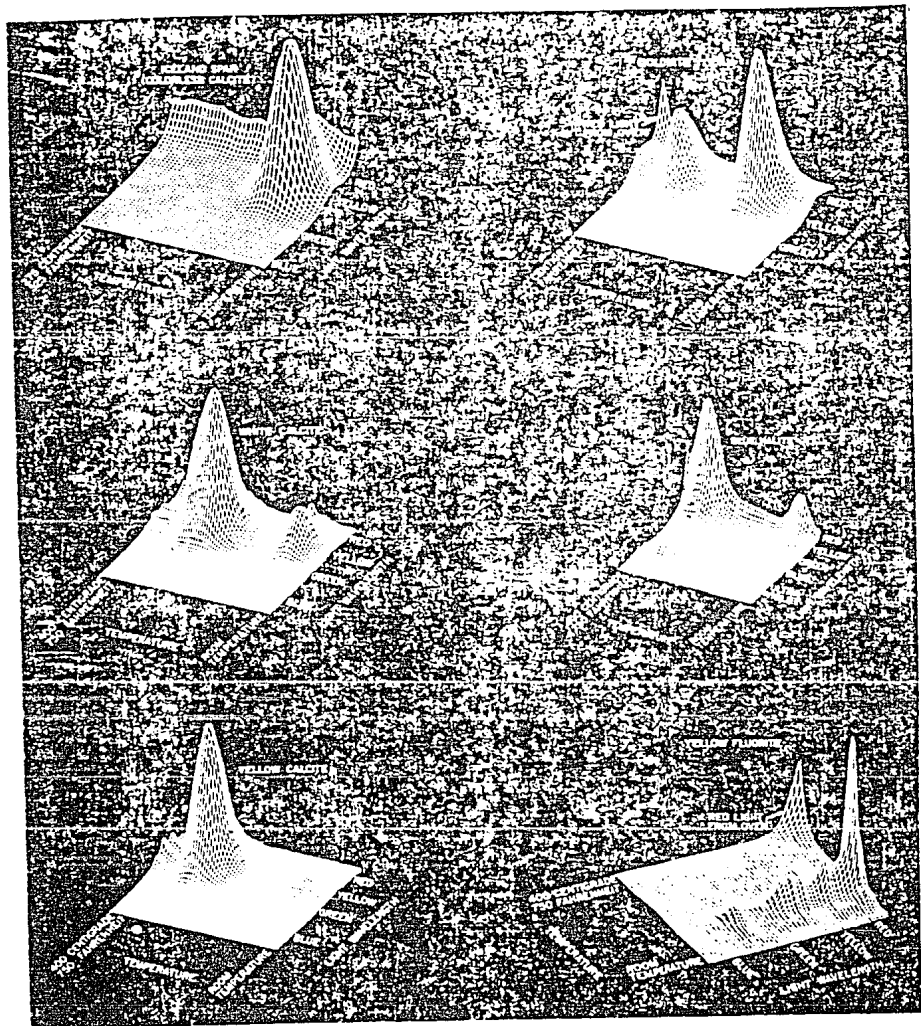
Figura 3.2. Relación entre la intensidad termoluminiscente $I(t)$ y el número de hoyos atrapados n_h en los centros de recombinación. También se muestra la relación lineal entre la temperatura y el tiempo durante el calentamiento.



Figuras 3.3. (a) Curvas isométricas para la intensidad termoluminiscente tanto en temperatura como en longitud de onda de una muestra TLD-100 irradiada con rayos X. La muestra fue preirradiada y templada a 400°C con un rápido enfriamiento a temperatura ambiente. (b) Contorno de la figura tridimensional en longitud de onda y temperatura⁽¹⁸⁾. (c) Seis gráficas tridimensionales de minerales irradiados con rayos γ . Nótese la complejidad de las gráficas⁽²⁰⁾.



(b)



(c)

bases que gobiernan el fenómeno. Pero es claro que mediante este simple modelo se pueden explicar por lo menos cualitativamente los rasgos fundamentales de la producción del fenómeno termoluminiscente.

El modelo aún puede ser analizado mediante las ecuaciones que describen el flujo de cargas entre los varios niveles durante la estimulación. Por esto es conveniente separar el fenómeno en dos partes. Una corresponde al llenado de las trampas durante la irradiación y otra a la descripción del vaciado de éstas durante la excitación térmica. Para empezar se plantearán las ecuaciones diferenciales que describen el tráfico de portadores de carga entre las bandas de conducción y de valencia, trampas y centros de recombinación.

Las cuatro ecuaciones simultáneas que gobiernan el proceso son(21):

$$dn_c/dt = f - n_c A_r n_h - n_c (N - n) A \quad (3.4a)$$

$$dn/dt = n_c (N - n) A \quad (3.4b)$$

$$dn_v/dt = f - n_v (N_h - n_h) A_h \quad (3.4c)$$

$$dn_h/dt = n_v (N_h - n_h) A_h - n_c n_h A_r \quad (3.4d)$$

donde los términos son:

n_c - concentración de electrones en la banda de conducción (cm^{-3});

n_v - concentración de electrones en la banda de valencia (cm^{-3});

- n - concentración de electrones en las trampas (cm^{-3});
 N - concentración de trampas (cm^{-3});
 n_h - concentración de hoyos en centros de recombinación (cm^{-3});
 N_h - concentración de centros de recombinación para hoyos (cm^{-3});
 A - probabilidad de transición de los electrones de la banda de conducción hacia las trampas (cm^3s^{-1});
 A_h - probabilidad de transición de los hoyos de la banda de valencia hacia los centros (cm^3s^{-1});
 A_r - probabilidad de recombinación de electrones de la banda de conducción con hoyos en los centros (cm^3s^{-1});
 f - la razón de generación de electrones- hoyos (cm^3s^{-1})

De acuerdo con las transferencias de carga mostradas en la figura 3.1, se ve que las transiciones banda-banda y centro-centro están prohibidas. Esto está manifestado en las ecuaciones (3.4) donde son ignorados los procesos mencionados anteriormente. Aún más, la transición 3 de liberación térmica de los electrones es también ignorada. Esto se puede asegurar en la realidad mediante el uso de bajas temperaturas en el proceso de irradiación.

Cada centro tiene una sección eficaz de captura asociada con éste. Con esto es posible relacionar los coeficientes de transición con la sección eficaz de captura mediante la ecuación $A = v\sigma$ donde v y σ ya fueron discutidos anteriormente. Ahora dado que se debe mantener neutralidad de las cargas se tiene que:

$$n_c + n = n_v + n_h \quad (3.5)$$

El proceso de vaciado de trampas concierne con el retorno del estado metaestable de las cargas que es inducido por la radiación, al estado de equilibrio. Al finalizar el proceso de irradiación y al comenzar el vaciado de trampas se considera que los portadores de carga tanto de la banda de valencia como de conducción son cero; esto es, $n_{c0} = n_{v0} = 0$. por tanto las transiciones 1 y 5 no son consideradas.

Las ecuaciones que describen el flujo de carga entre los varios niveles de energía y bandas durante el vaciado de trampas ha sido descrito por varios autores^(6,22,23), éstos suponen que una vez vaciada la trampa, el electrón libre no puede distinguir entre esta y todas las trampas del mismo tipo. Por tanto es posible escribir:

$$\frac{dn_c}{dt} = np - n_c(N - n)A - n_c n_h A_r \quad (3.6a)$$

$$\frac{dn}{dt} = n_c(N - n) - np, \quad (3.6b)$$

$$\frac{dn_h}{dt} = -n_c n_h A_r \quad (3.6c)$$

Todos los términos permanecen como previamente se describió. Transiciones de o hacia la banda de valencia no son consideradas en este caso, por lo tanto la condición de neutralidad es:

$$n_c + n = n_h \quad (3.7)$$

Adicionalmente, dado un experimento, la ecuación $T = T_0 + \beta t$ es también tomada en cuenta. Una vez más, transiciones directas banda-banda y centro-centro son ignoradas.

La diferencia primordial entre el proceso de llenado de trampas y el vaciado de éstas descrito en las ecuaciones (3.4a-d) y (3.6a-c) respectivamente es que la probabilidad de liberación térmica, p , es considerada cero en las ecuaciones (3.4a-d), pero es considerada "grande" en las ecuaciones (3.6a-c).

La dependencia de p con la temperatura está relacionada con los valores de E y s . Como se discutió anteriormente, la energía E es interpretada como la diferencia entre la trampa y el fondo de la banda de conducción; esto es, la profundidad de la trampa. El factor de Boltzmann $\exp[-E/kT]$ es la probabilidad de que la energía térmica impartida al electrón vía interacción de fonones sea suficiente para liberar al portador de la trampa.

La interpretación usual de s es que éste representa el número de veces por unidad de tiempo, ν , que un electrón enlazado interactúa con la red multiplicado por la "probabilidad" de transición, k (24). De hecho s incluye un término en la entropía. La razón de liberación de electrones atrapados puede ser escrita como:

$$p = \nu k \exp[-F/kT] \quad (3.8)$$

donde F es la energía libre de Helmholtz, dada por $F = E - TS$, donde S es el cambio en la entropía durante la reacción. Por

tanto la ecuación (3.7) se puede expresar como:

$$p = \nu K \exp[S/k] \exp[-E/kT] \quad (3.9)$$

Mediante la comparación de (3.9) y (3.1) se puede ser indentificado como $\nu K \exp[S/k]$.

3.2 Adiciones al Modelo Simple

Es claro que mediante el uso de este modelo de bandas para describir las propiedades esenciales del fenómeno termoluminiscente, es un hecho que no exista fosforo que posea un esquema de bandas de energía tan simple. La mejor evidencia viene del propio fenómeno termoluminiscente. Por ejemplo en este modelo elemental, solamente un pico termoluminiscente deberá ser observado al calentar la muestra después de haberla irradiado. Aún más, la emisión termoluminiscente deberá ser de un solo color. En la figura 2.4 se muestran cuatro picos termolumiscentes, superponiéndose uno al otro al variar la temperatura, de la curva de luz de LiF entre temperatura ambiente y 250°C. Si la recombinación toma lugar teniendo solo un nivel localizado, entonces la interpretación de esto es que hay cuatro niveles de trampas y un centro de recombinación. Si esto ocurriera, debería esperarse que el color de la luz emitida en cada pico fuera la misma, y de hecho en términos burdos es lo que se observa⁽¹⁸⁾ (ver figura 3.3). Por otro lado, si la misma

muestra se irradia a bajas temperaturas, por ejemplo 200°K, se observaría un número mayor de picos termoluminiscentes entre esta temperatura y la ambiental. Aún más, se vería que algunos de éstos picos emitirían a una longitud de onda totalmente diferente a las mostradas en la figura 3.3. Esto implica la presencia de más de un solo centro de recombinación⁽²⁵⁾. Este modelo aún más complejo es ilustrado en la figura 3.3 donde un diagrama tridimensional de muestras naturales exhiben variados picos.

Es claro que hay un número de trampas, o centros de recombinación, o ambos, las cuales deben incluirse en el esquema de niveles de energía. Un modelo generalizado puede ser como el representado en la figura 3.4. Aquí hay una serie de trampas para electrones N_j y trampas para hoyos N_{hi} con n_j electrones atrapados y n_{hi} hoyos atrapados respectivamente. Después de la irradiación y antes del calentamiento la condición de neutralidad de carga es:

$$En_j = En_{hi} \quad (3.10)$$

Se ha hecho mención a la posibilidad de que varias trampas y un centro de recombinación pueda dar a lugar a varios picos termoluminiscentes, cada uno con la misma longitud de onda pero con diferentes profundidades de trampa. Se debe mencionar que el caso opuesto puede suceder; esto es, una trampa y varios centros de recombinación. Esto dará una misma energía de activación pero

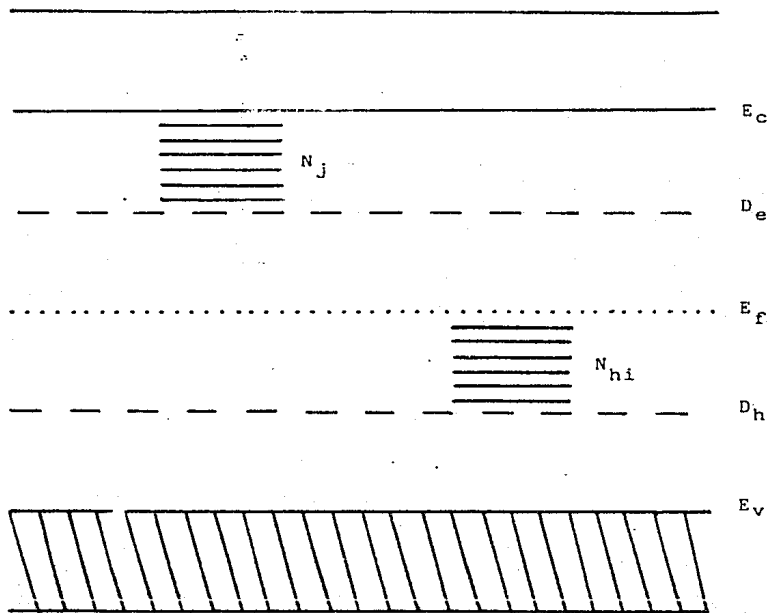


Figura 3.4. Niveles de energía generalizados para el fenómeno termoluminiscente.

diferentes longitudes de onda. En este mecanismo el primer pico de luz corresponde al uso del centro de recombinación con la más alta sección eficaz de captura; el siguiente pico corresponde al centro con la siguiente más alta sección eficaz, y así sucesivamente⁽²³⁾.

Un ingrediente esencial del mecanismo termoluminiscente discutido hasta ahora es que durante el calentamiento los electrones son térmicamente liberados de sus trampas hacia la banda de conducción antes de recombinarse con hoyos atrapados. Esto de hecho debe provocar un cambio en la conductividad del material durante la estimulación térmica. Mediante la aplicación de un campo eléctrico deberá detectarse una "conducción térmicamente estimulada". Existen varios materiales para los que se han realizado medidas simultánea de termoluminiscencia y conductividad térmicamente estimulada, obteniéndose gráficas como las mostradas en la figuras 3.5. En ellas se puede ver que ambos fenómenos tienen el mismo comportamiento general pero en una visión más detallada se ve que los picos se encuentran desfasados una cierta temperatura lo que representa una diferencia. Algunos desarrollos teóricos se han realizado con el objeto de explicar esta diferencia entre ambos fenómenos. Estas teorías están basadas en el modelo de bandas de energía y hacen uso de un nuevo nivel energético conocido como trampa "térmicamente desconectada"⁽²²⁾. El diagrama usado en este modelo es el mostrado en la figura 3.6. Una trampa térmicamente desconectada

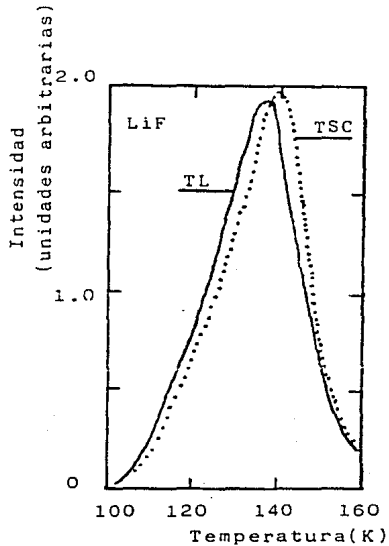
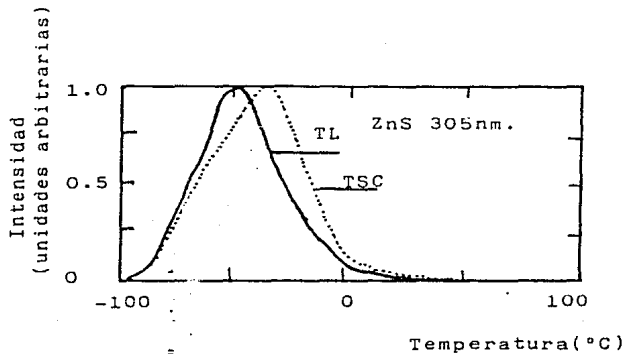


Figura 3.5. Ejemplos experimentales de termoluminiscencia (TL) y conductividad térmicamente estimulada (TSC) en varios materiales.

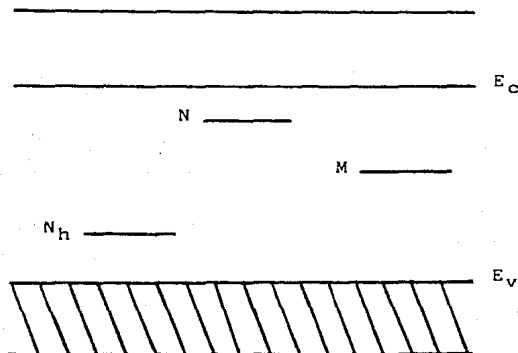


Figura 3.6. Esquema de bandas de energías conteniendo un nivel adicional M correspondiente a las trampas térmicamente desconectadas.

(concentración M , ver figura 3.6) es aquélla que puede ser llenada con electrones durante el proceso de irradiación pero que tiene una profundidad de trampa mucho mayor que el nivel normal tal que cuando la muestra es calentada, solamente los electrones atrapados en N son liberados. Electrones en M no son afectados y por lo tanto se dice que la trampa esta "desconectada".

El efecto de incorporar un nivel adicional en el esquema de bandas de energía, altera las ecuaciones que describen el llenado y vaciado de trampas que están dadas por las ecuaciones (3.4) y (3.6), respectivamente, para el modelo simple de nivel de energía. Lo más importante a mencionar es que la condición de neutralidad de carga es:

$$n + m = n_h \quad (3.11)$$

que es un ejemplo particular de la ecuación (3.10). Aquí m es la concentración de electrones atrapados en las trampas desconectadas M . El punto principal a considerar es la condición de neutralidad durante el proceso de irradiación que es:

$$n_c + n + m = n_v + n_h \quad (3.12)$$

Debido a que el nivel M no es afectado se tiene que :

$$dm/dt = 0 \quad (3.13a)$$

y

$$n_c + n + m = n_h \quad (3.13b)$$

3.3 Modelos Complejos

Un importante rasgo de los modelos termoluminiscentes discutidos hasta ahora es que cuando el electrón es elevado de su estado base hacia su estado excitado durante la absorción de la radiación, se asocia una transición en la banda de conducción. Similarmente, cuando el electrón es liberado de su trampa mediante la excitación térmica, este es elevado a la banda de conducción antes de que este se recombine con un hoyo atrapado. Como se discutió anteriormente, luminiscencia puede resultar como consecuencia de las transiciones centro-centro del tipo mostrado en la figura 2.11. En este caso habrá termoluminiscencia cuando electrones atrapados en el nivel C son elevados térmicamente al nivel A, en donde la recombinación puede ocurrir con electrones en el nivel B. El nivel A puede ser considerado como la banda de conducción en este caso. Es claro que este fenómeno no muestra conductividad térmicamente estimulada en el proceso de irradiación ni en el de estimulación térmica.

Las ecuaciones que gobiernan este proceso han sido examinadas por ciertos autores⁽²³⁾, que en el vaciado de trampas son:

$$dn/dt = sn_e - np \quad (3.14a)$$

$$dn_h/dt = -n_h n_e A_r \quad (3.14b)$$

$$dn_e/dt = np - n_e(n_h A_r + s) \quad (3.14c)$$

donde n_c es la concentración de electrones en el nivel A (ver figura 2.11, transiciones localizadas). Los otros términos permanecen como se definieron anteriormente.

Recientemente se propuso un modelo más complejo para la producción de termoluminiscencia. Este modelo fue primeramente propuesto por Schon(26), en donde no solamente es permitida la liberación térmica de los electrones y su recombinación con hoyos atrapados, sino además es considerada la liberación térmica de hoyos atrapados y su recombinación con electrones atrapados al mismo tiempo. Las transiciones energéticas consideradas en este modelo durante la producción de termoluminiscencia son mostradas en la figura 3.7 donde el nivel de demarcación y niveles de Fermi han sido omitidos para mayor claridad. Las ecuaciones para el proceso de vaciado son:

$$dn_c/dt = np - n_c(N - n)A - n_c n_h A_r \quad (3.15a)$$

$$dn/dt = n_c(N - n)A - np - n_v n A_r^* \quad (3.15b)$$

$$dn_v/dt = p^* n_h - n_v(N_h - n_h)A_h - n_v n A_r^* \quad (3.15c)$$

$$dn_h/dt = n_v(N_h - n_h)A_h - p^* n_h - n_c n_h A_r \quad (3.15d)$$

En este conjunto de ecuaciones los términos permanecen como anteriormente se definieron en las ecuaciones (3.4a-d) y (3.6a-c) con la adición de: P^* - probabilidad por unidad de tiempo de liberación de un hoyo atrapado hacia la banda de valencia

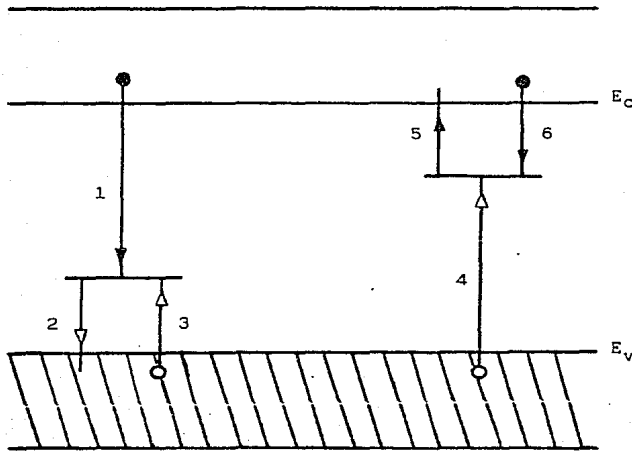


Figura 3.7. Diagrama representando el modelo de Schon⁽²⁶⁾. Transiciones permitidas: (1) y (4) son recombinaciones; (2) y (5) representa la liberación térmica; (3) y (6) la recaptura. Electrones, círculos negros; transiciones de electrones, flechas negras; hoyos, círculos blancos; transiciones de hoyos, flechas blancas.

(transición 2, figura 3.7); A_r^* - coeficiente de transición para la recombinación de un hoyo libre con un electrón atrapado (volumen por unidad de tiempo; transición 4). La probabilidad de liberación de un hoyo atrapado puede ser escrita como:

$$p^* = s^* \exp[-E^*/kT], \quad (3.16)$$

donde se ve que esta es idéntica a la ecuación (3.1) siendo E^* la "profundidad" del hoyo con respecto a la banda de valencia y s^* la frecuencia de escape. Es claro que para hoyos y electrones que se liberen a la misma temperatura $p = p^*$ también se debe considerar la ecuaciones (3.5) que debe aplicarse durante el proceso de liberación.

3.4 Solución a las Ecuaciones de Vacío de Trampas

Las expresiones que describen el proceso de vaciado de trampas para el modelo de dos niveles están dadas en las ecuaciones (3.6a-c). En caso de introducir trampas térmicamente desconectadas deberán considerarse las ecuaciones (3.13a,b). Debido a que estas ecuaciones no tienen una solución analítica exacta es necesario aplicar ciertas aproximaciones para dar una solución analítica. Normalmente se toman dos consideraciones, que son: (1) que la concentración de electrones libres en la banda de conducción sea mucho menor que la concentración de electrones atrapados; esto es:

$$n_c \ll n \quad (3.17)$$

y (2) que la razón de cambio de la concentración de electrones en la banda de conducción sea mucho menor que la razón de cambio de la concentración de electrones atrapados; esto es:

$$dn_c/dt \ll dn/dt \quad (3.18)$$

Tengase en cuenta que estas desigualdades no significan lo mismo. La desigualdad (3.18) expresa que la concentración de electrones libres es aproximadamente constante y esto no necesariamente requiere que $n_c \ll n$. Ambas ecuaciones implican que la vida promedio de un electrón libre es mucho menor que la de uno atrapado, dando lugar a una concentración cuasi-estacionaria de electrones libres. Estas consideraciones han sido empleadas en la solución de las ecuaciones diferenciales, con o sin la adición de trampas térmicamente desconectadas M. La aplicación de las desigualdades a las ecuaciones (3.6a-c) por Halperin y Braner(1960)⁽²³⁾ obtubieron la ecuación

$$I(t) = - dn_h/dt = pnA_r n_h / [A_r n_h + A(N - n)] \quad (3.19)$$

la cual aplicando $n_c \ll n$ (esto es $n = n_h$, de la ecuación (3.7)) se tiene que

$$I(t) = pn^2 / [n + R(N - n)] \quad (3.20)$$

donde $R = A/A_r$.

Kelly y Braunlich (1970)(28) incluyen trampas térmicamente desconectadas en su análisis resultando en:

$$I(t) = pn(m + n)/[(1 - R)n + m + RN] \quad (3.21)$$

Donde se ve que si $m = 0$ se reduce a la ecuación (3.20).

Tomando el criterio de Randall y Wilkins (1945)^(1a,b) los modelos termoluminiscentes de las figuras 3.1 y 3.6 darán resultados de modelos cinéticos de primer orden si la probabilidad de reatrapamiento es despreciable comparada con la probabilidad de recombinación. Esto puede ser expresado en la siguiente desigualdad:

$$A_{rn}n_h \gg A(N - n) \quad (3.22)$$

ó

$$R \ll n/(N - n) \quad (3.23)$$

ya que $n_h = n$.

Aplicando la ecuación (3.23) a (3.20) se tiene que:

$$I(t) = pn = n \exp[-E/kT] \quad (3.24)$$

Debido a que $dn_c/dt \ll dn/dt$ se tiene que:

$$I(t) = -dn_h/dt = -dn/dt$$

por lo tanto

$$I(t) = -dn/dt = n \exp[-E/kT] \quad (3.25)$$

Integrando desde $t = t_0$ y suponiendo un calentamiento lineal resulta

$$I(T) = n_0 \exp[-E/kT] \exp \left[-(s/\beta) \int_{T_0}^T \exp[-E/kT] dT \right] \quad (3.26)$$

que es simplemente la expresión de Randall y Wilkins de primer orden (monomolecular) con condiciones a la frontera $T = T_0$ y $n = n_0$ cuando $t = t_0$.

Garlick y Gibson (1948) (17) prefirieron no suponer que el reatrapamiento fuese despreciable, en este caso las desigualdades expresadas en (3.22) y (3.23) no se aplican. En su lugar, si el reatrapamiento domina se tiene que :

$$A_r n_h \ll A(N - n) \quad (3.27)$$

$$\text{o} \quad R \gg n/(N - n) \quad (3.28)$$

que cuando $n \ll N$ puede ser usado en la ecuación (3.20) que resulta

$$I(t) = n^2 \exp[-E/kT] / RN. \quad (3.29)$$

Esta ecuación de hecho se introdujo en el capítulo 2 y representa la expresión de segundo orden con $\alpha = \exp[-E/kT] / RN$. En caso que $R = 1$ bajo circunstancias especiales esta ecuación resulta en:

$$I(t) = n^2 \exp[-E/kT] / N \quad (3.30)$$

respectivamente, la solución de estas ecuaciones mediante un calentamiento lineal resulta:

$$I(T) = n_0^2 s' \exp[-E/kT] / \int_1^{T} \left[1 + (n_0 s' / B) \int_{T_0}^{T} \exp[-E/kT] dT \right]^2 \quad (3.31)$$

que expresadas en forma más conveniente con $s' = s/RN$ ó $s' = s/N$, resulta en la expresión de Garlick y Gibson(1948)(17) con $R = 1$.

Las ecuaciones que describen la producción de termoluminiscencia cuando no se incluyen las transiciones en las bandas delocalizadas están dadas por las ecuaciones (3.14a-c). Debido a que electrones liberados no entran a la banda de conducción (vease figura 2.11) estos no pueden moverse libremente através de la red y solo se pueden recombinarse con los centros del cual provinieron. Esto desliga la dependencia en la concentración durante el proceso de recombinación. Ciertos autores⁽²⁹⁾ reemplazan el término $n_h A_r$ por γ , donde γ es definida como la "probabilidad" de recombinación, en seg^{-1} , y es considerada independiente de n_h (la concentración de hoyos atrapados en los centros de recombinación a través de la muestra).

Aplicando las desigualdades $n_e \ll n$ y $dn_e/dt \ll dn/dt$ (equivalentes a las desigualdades (3.17) y (3.18)) se encuentra que:

$$I(t) = -dn_h/dt = -dn/dt = npY/(Y + s) \quad (3.32)$$

$$\text{ó} \quad I(t) = (nsY/(Y + s))\exp[-E/kT]$$

esta ecuación puede ser escrita como

$$I(t) = -dn/dt = ns*\exp[-E/kT] \quad (3.33)$$

donde $s^* = sY/(Y + s)$. Se ve que esta es la misma ecuación de Randal y Wilkins de primer orden.

Las ecuaciones que describen la liberación simultánea de hoyos y electrones durante la estimulación térmica están dadas en las ecuaciones (3.15a-d). Estas expresiones están basadas en el modelo de Schon-Klasens para la termoluminiscencia (figura 3.7) y se han dado soluciones aproximadas por Braunlich y Scharmann (1966)⁽²⁷⁾. Estos autores consideran cuatro casos extremos relacionando la razón de atrapamiento de portadores de carga (tanto para electrones como para hoyos). Refiriéndose a las ecuaciones (3.15a-d) estos autores definen $R = A/A_p$ y $R^* = A_h/A^*$ y consideran (i) $R \approx 0$, $R^* \approx 0$; (ii) $R \gg 1$, $R^* \gg 1$; (iii) $R \approx 0$, $R^* \gg 1$; (iv) $R \gg 1$, $R^* \approx 0$. Mediante la aplicación de las aproximaciones $n_c \ll n$ y $n_v \ll n_h$ junto con $dn_c/dt \ll dn/dt$ y $dn_v/dt \ll dn_h/dt$ son capaces de mostrar que (i), (iii) y (iv) producen cada uno una curva de luz de primer orden (monomolecular) equivalente a la obtenida por Randal y Wilkins, mientras el caso (ii) produce una curva equivalente a la obtenida por Garlick y Gibson.

3.5 Supralinealidad y Sensibilidad

Las ecuaciones diferenciales que describen el tráfico de carga entre los niveles de energía durante el proceso de llenado de trampas están dadas por las ecuaciones (3.4a-d) para el modelo simple de una trampa y un hoyo (figura 3.1). Por neutralidad de carga, la ecuación (3.5) deberá tomarse en cuenta. Es claro que en este modelo las recombinaciones banda-banda son ignoradas y la liberación térmica de electrones y hoyos atrapados durante el proceso de irradiación es despreciable; en otras palabras $E \ll kT$ a $T = T_0$ constante. Estas ecuaciones han sido examinadas por varios autores (30,31) quienes han tratado de darle una solución a n. De cualquier forma las ecuaciones diferenciales son analíticamente imposibles de solucionar y con el fin de obtener soluciones, ciertas aproximaciones y consideraciones tienen que ser introducidas. Sería en vano querer dar aquí todo un análisis de estas ecuaciones, pero sería conveniente darle al modelo una nueva extensión para así poder obtener nuevos rasgos del comportamiento de los niveles de retención de carga durante el proceso de irradiación. Con el fin de explicar el fenómeno de supralinealidad en termoluminiscencia Suntharalingam y Cameron (1969)(32) discuten la posibilidad de un nivel extra de atrapamiento en el modelo de bandas de energía. Estos autores consideran el diagrama de bandas de la figura 3.6 aunque no es necesaria la consideración de trampas térmicamente desconectadas.

El modelo de Suntharalingam y Cameron, comunmente conocido

como modelo competitivo de trampas, requiere que ambas trampas A (concentración N) y B (concentración M) comiencen a ser llenadas durante el proceso de irradiación. A un cierto punto de nivel de dosis absorbida, D_1 , se postula que el nivel B de cargas atrapadas se satura, esto es que las trampas quedan llenas, y por tanto más electrones quedan disponibles para ser atrapados por el nivel A. Si se monitorea la intensidad termoluminiscente debida a las cargas en A con respecto a la dosis absorbida, se verá un incremento lineal hasta D_1 , desde donde ésta comenzará a incrementarse a una nueva razón. Un ejemplo esquemático del crecimiento supralineal es mostrado en la figura 3.8. La saturación corresponde cuando todas las trampas estén llenas, esto es $n = N$, a la dosis D_2 . Ejemplos actuales de supralinealidad en ciertos materiales son mostrados en la figura 3.9.

Muchos modelos se han desarrollado con el fin de explicar el fenómeno de supralinealidad en la termoluminiscencia. Pero todos estos modelos solo explican características particulares del comportamiento de un cierto material. Esto significa que el fenómeno tiene varias explicaciones plausibles pero ninguna puede predecir observaciones experimentales hasta el momento.

La sensibilidad de un material termoluminiscente es medida por la intensidad de emisión termoluminiscente por unidad de dosis absorbida por unidad de masa. Por tanto, si dos materiales de igual masa son irradiados con la misma dosis entonces quien

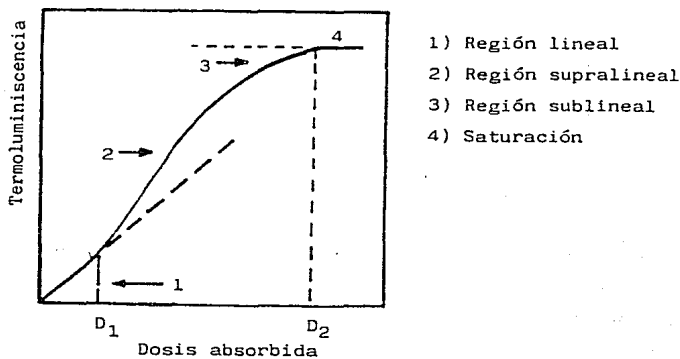
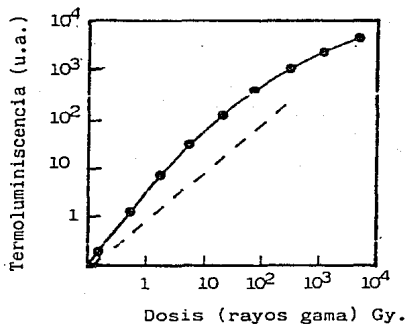
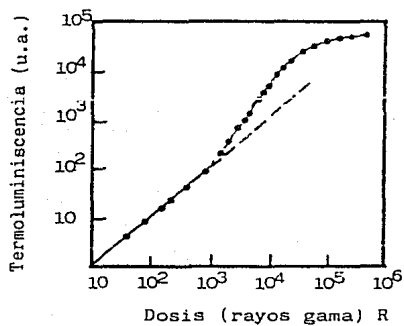


Figura 3.8. Representación esquemática de la curva de crecimiento termoluminiscente que muestra las regiones lineal, sublineal y supralineal.



u.a. = unidades arbitrarias.

Figura 3.9. Ejemplos de crecimiento supralineal en (a) $\text{LiF}(33)$; (b) $\text{CaSO}_4:\text{Dy}(34)$. La línea punteada representa la región lineal en cada caso.

al ser calentado exhiba la más alta emisión termoluminiscente se dice que es más sensible. Un efecto importante que es comunmente observado en muchos materiales termoluminiscentes es el incremento en la sensibilidad (dado un pico termoluminiscente) seguido de la absorción de la radiación. Este proceso, conocido como sensibilización, es importante en el área de la dosimetría de la radiación donde la intensificación de la sensibilidad es indispensable. El mecanismo de sensibilización está muy relacionado al fenómeno de supralinealidad y los modelos que se usan para explicar propiedades de supralinealidad pueden explicar propiedades de este otro fenómeno. Sería en vano el querer dar una explicación detallada a los posibles mecanismos que puedan dar explicación al fenómeno. Esto es debido a que todos los modelos dependen fuertemente del defecto particular propuesto para dar una razón al pico termoluminiscente en consideración y, como en supralinealidad, es imposible decidir entre todos los modelos para usar los datos experimentales disponibles. Modelos de competición de trampas, conversión de centros y creación de trampas son los más estudiados hasta el momento y para aquellos interesados en este estudio la referencia es de ayuda⁽³⁵⁾.

CAPITULO 4

DOSIMETRIA TERMOLUMINISCENTE

El progreso en la medida de la radiación absorbida se ha logrado gracias al uso del fenómeno termoluminiscente. Estos materiales son rutinariamente usados en varias aplicaciones dosimétricas como monitoreo ambiental, dosimetría personal y aplicaciones médicas. Es claro que para cada una de estas áreas deberá escogerse el tipo de dosímetro que se adapte o responda a las condiciones de uso para una buena obtención de resultados. Por esto es conveniente examinar los requerimientos generales de los dosímetros termoluminiscentes.

4.1 Requerimientos Generales de los Dosímetros Termoluminiscentes.

La selección del material termoluminiscente debe estar basada en la aplicación particular a desarrollar. Las aplicaciones, como anteriormente se mencionó, son dosimetría personal, monitoreo ambiental y aplicaciones médicas. Es claro que estas divisiones generales sufren intersecciones de acuerdo con el uso en particular. Los dosímetros modernos son construidos con aplicaciones específicas de antemano; como por ejemplo la medida de la dosis absorbida en tejido por rayos X o de partículas beta de baja energía. Para el logro de estas medidas con aceptable credulidad es importante y esencial el escoger el dosímetro. Las propiedades tales como linealidad, intervalo de

respuesta a la dosis absorbida así como a energías, reproducibilidad, estabilidad en el almacenamiento de la información, isotropía, efectos del medio ambiente y otras, son de extrema importancia ya que afectan la respuesta termoluminiscente. Estaría fuera del objetivo de este escrito el querer discutir cada uno de estos factores profundamente, pero mencionaremos algunos de los más importantes.

4.1.1 Respuesta a la Dosis Absorbida.

Sería ideal el encontrar un dosímetro en el que la intensidad luminiscente fuera linealmente proporcional a la dosis absorbida por éste. En el capítulo anterior se vio que muchos de los materiales termoluminiscentes exhiben una respuesta no lineal con respecto a la dosis absorbida. Los fenómenos de supralinealidad (aproximándose a la saturación) y sublinealidad pueden provocar problemas de sobreestimación o subestimación respectivamente. El fenómeno de saturación se refiere al llenado completo de las trampas o al daño que la radiación pueda provocar en el cristal. El que aparezcan regiones no lineales en la curva de respuesta de los detectores no significa que el dosímetro TLD no sea funcional; éste solamente requiere de una fina calibración y ciertas correcciones por errores adicionales que puedan ocurrir. Los factores de corrección, y por lo tanto los errores, pueden ser grandes cuando el dosímetro es usado en la zona sublineal aproximando la saturación del material. La

supralinealidad y saturación pueden ser afectados por exposiciones anteriores a la radiación y los tratamientos térmicos a los que éstos sean sometidos. Por lo tanto un segundo uso del material puede presentar problemas, esto es, que pueda presentar diferentes respuestas a una dosis dada. Con el fin de resolver estos problemas de sensibilidad y saturación muchos materiales son tratados térmicamente para restaurar las propiedades originales. Los procedimientos de recocido son discutidos más adelante. Tanto la supralinealidad como la sensibilidad son también dependientes de la transferencia lineal de energía (LET).

La mínima energía detectable por el material corresponde a la intensidad termoluminiscente que es significativamente grande en comparación con aquella que produce un material sin irradiar. Para propósitos prácticos se toma como tres veces la desviación estándar de la lectura de la muestra sin irradiar. Esta dosis mínima detectable depende tanto del tamaño del material como de la sensibilidad. También debe considerarse como dependiente de los artificios electrónicos de lectura y tratamientos térmicos.

Una propiedad importante que faltaba mencionar es que la respuesta del dosímetro es independiente de la rapidez de dosis. Muchos materiales han sido probados a altas razones de dosis y dosis totales mediante el uso de pulsos de rayos X.

4.1.2 Respuesta a Energías.

La intensidad de luz emitida por los materiales es proporcional a la cantidad de energía inicial absorbida por el

material. Es importante mencionar que la variación en la absorción de la energía de los materiales es dependiente del coeficiente de absorción del material (μ) a una energía dada. Para radiaciones gamma o rayos X la absorción depende de $S(E)$ del sistema y está definida como la razón entre el coeficiente masico de absorción del material $(\mu/\rho)_m$ y la del material de referencia (comunmente aire) $(\mu/\rho)_{ref}$. μ corresponde al coeficiente de absorción y ρ a la densidad. Entonces se tiene que :

$$S(E) = (\mu/\rho)_m / (\mu/\rho)_{ref} \quad (4.1)$$

Comunmente el término (μ/ρ) se refiere a una composición ó mezcla de materiales consistente de varios elementos. Entonces (μ/ρ) puede ser definida mediante la ley de mezclas:

$$(\mu/\rho) = \sum_i (\mu/\rho)_i w_i \quad (4.2)$$

donde w_i es la fracción en peso del i -ésimo elemento.

El coeficiente de absorción de energía es dependiente de los procesos que ocurran durante la absorción. Estos son, producción de pares, efecto Fotoeléctrico o efecto Compton. La proporción de cada uno de éstos efectos depende de la energía de la radiación, del contenido isotópico del material y de su número atómico. Por ejemplo, para fotones de energía $< 15\text{MeV}$, el efecto fotoeléctrico domina, para $15 \text{ KeV} < E < 10 \text{ MeV}$ y bajos números atómicos el efecto Compton domina. Para altos números atómicos, Z , el efecto fotoeléctrico predomina para energías mayores de 10^2 KeV . Por

tanto, sería conveniente tener una mezcla de dosímetros de alta y baja Z con el fin de poder determinar la calidad de la radiación. Esto no ha sido posible debido a la falta de materiales con alto número atómico Z(35).

Hablando específicamente de radiación electromagnética, la respuesta a la energía del fotón es comunmente definida con respecto a la respuesta a una cierta energía dada. Frecuentemente se usa ^{60}Co con energía de 1.25 MeV. De esto se define la "Respuesta Relativa de Energía" como:

$$(\text{RER})_E = S(E)/S(1.25\text{MeV}^{60}\text{Co}) \quad (4.3)$$

La figura 4.1 muestra una gráfica de (RER) contra E(MeV) para LiF, CaF_2 y para un material teórico con $Z_{\text{ef}} = 55$, donde Z_{ef} es el número atómico efectivo. Sería deseable tener un detector que exhiba una respuesta constante sobre un largo intervalo de energías, es por esto que se prefieren materiales con Z no muy grande.

Adicionalmente, el tener dosímetros equivalentes al tejido humano provee de una equivalencia de la dosis recibida por éste. Un ejemplo de este tipo de dosímetros es Borato de litio (LiB_4O_7) con una $Z_{\text{ef}} = 7.4$ equivalente a la del tejido humano.

Si fuera necesario, la respuesta a la energía puede ser modificada mediante el uso apropiado de filtros. Por ejemplo, si Fluoruro de Litio (LiF) es requerido para medir fotones de energía de 30KeV, la sobrestimación en esta región puede ser reducida

mediante el uso de aluminio como filtro entre la fuente y el detector (1.5 mm Al). Los mejores resultados, cuando se desea una respuesta constante para distintas energías, se obtienen mediante el uso de multifiltros de diferentes espesores. Esta selección es puramente empírica, pero es posible calcular el filtro óptimo con las características deseadas⁽³⁷⁾.

La respuesta a partículas beta es aun más compleja y las medidas de dosis absorbida no son tan directas. Las partículas beta viajan a un intervalo muy variado de distancias dentro del medio dependiendo de la energía de éstas. Es por esto que la respuesta a la energía absorbida depende fuertemente de la forma del detector, principalmente de su espesor, o en caso de ser polvo, del tamaño del grano. En general la respuesta relativa de un cierto dosímetro se incrementa con la energía de las partículas beta. La figura 4.2 muestra un ejemplo experimental para LiF:Mg,Ti.⁽³⁸⁾

Mediante el uso de la teoría de la cavidad de Brag-Gray se han hecho cálculos sobre la energía absorbida pero éstos son demasiado complicados debido principalmente al tamaño del grano o espesor del material TLD con respecto al alcance de las partículas β . Sería inconveniente el desarrollar aquí éstos calculos pero las referencias pueden ser de ayuda para aquellos que gusten introducirse en el topico ^(39,40). La energía depositada en el grano depende del balance entre la energía que sale del grano, la que entra y aquella que permanece en este.

Esto de hecho depende de la energía del fotón incidente, del valor de Z_{ef} y del medio que lo rodea. Para fotones con energías mayores a 0.15 MeV, el fenómeno Compton domina y el flujo de energía dentro y fuera del grano esta balanceado. Esto es debido a que el fenómeno en ese intervalo de energías es independiente de Z . Los fotoelectrones son producidos por la radiación para energías menores de 0.15 MeV, escapan del material y penetran el aire de su alrededor de la misma forma que aquellos generados en el aire y que penetran el material. Debido a que los TLD tienen una Z_{ef} mucho mayor que el aire, implica que más energía es transportada fuera del material vía fotoelectrones que aquella que energía que es introducida y por tanto esto resulta en una pérdida de energía. La magnitud de esta pérdida energética disminuye al aumentar el tamaño del grano. La figura 4.3 muestra la pérdida de energía para LiF y CaF_2 (39).

La respuesta de materiales TLD con respecto a neutrones es compleja y se presentan problemas para el cálculo de la dosis vía neutrones. Debido a que los neutrones no tienen carga, su detección esta bajo la acción de un efecto o de partículas secundarias producidas durante la irradiación neutrónica. En el caso de neutrones térmicos, se incorporan isótopos con una gran sección eficaz dentro de los detectores con el fin de obtener una alta ganancia en partículas secundarias. Por ejemplo LiF y $Li_2B_4O_7$ responden a neutrones lentos mediante la reacción ${}^6Li(n,\alpha){}^3H$ y ${}^{10}B(n,\alpha){}^7Li$.

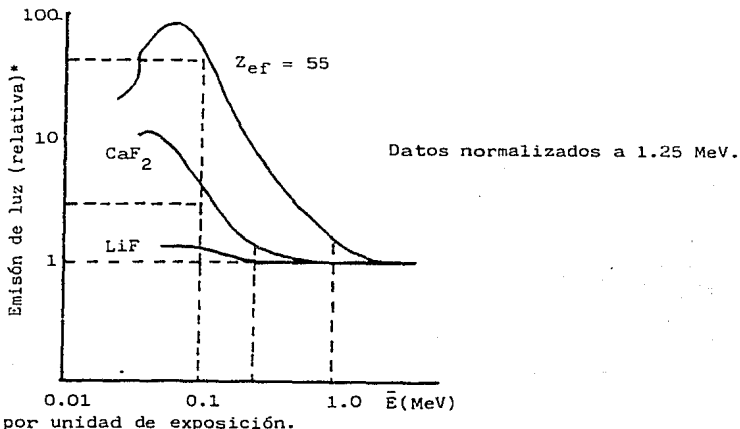


Figura 4.1. Respuesta relativa a la energía con respecto a energía de fotones para LiF ($Z_{ef} = 8.14$), CaF_2 ($Z_{ef} = 16.3$) y para un material teórico de $Z_{ef} = 55$. El material de referencia es aire⁽³⁶⁾.

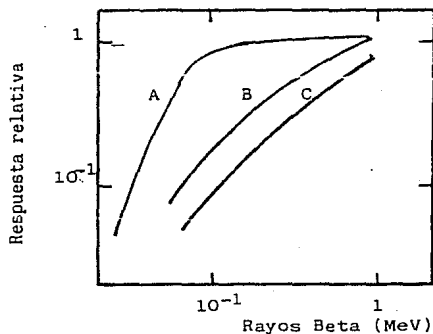
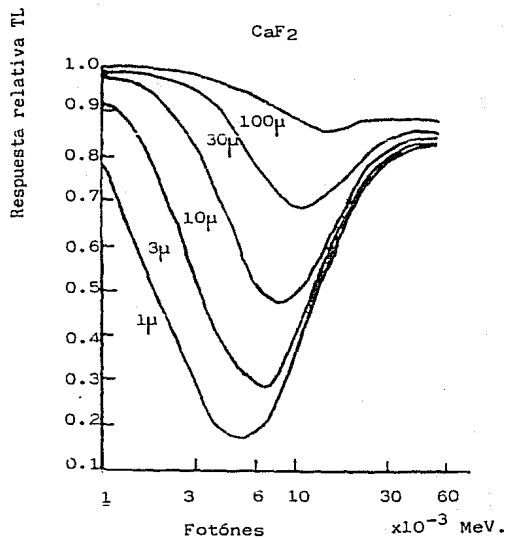
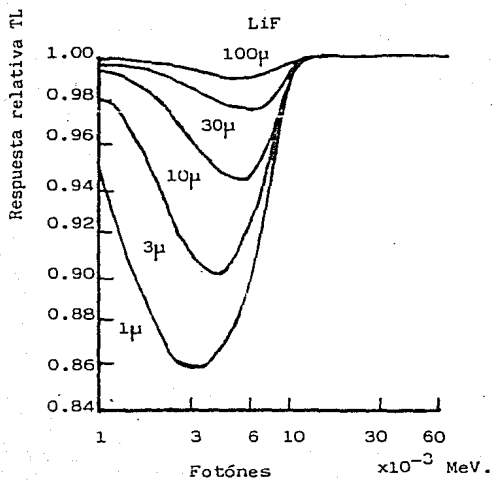


Figura 4.2. Respuesta relativa termoluminiscente en función de la energía media de rayos beta en LiF:Mg,Tl. A) Polvo, promedio del tamaño de grano 0.15mm. B) Barra de teflon de LiF de 1 mm sobre la superficie de un solución radiactiva de rayos β . C) Como en B pero en esta ocasión sumergida en la solución⁽³⁸⁾.



El tamaño del grano está indicado en las gráficas.

Figura 4.3. Respuesta termoluminiscente en granos de LiF y CaF₂ en aire en función de la energía de fotones. Estas medidas son relativas a la respuesta de LiF sumergido en LiF y CaF₂ sumergido en CaF₂ respectivamente⁽³⁹⁾.

La respuesta termoluminiscente se incrementa para neutrones rápidos como resultado de la producción de partículas fuertemente cargadas y protones de retroceso. Es de notarse que la sensibilidad termoluminiscente para neutrones rápidos es menor que para neutrones lentos. Esto es debido a que la termoluminiscencia que resulta de la irradiación con neutrones es enteramente producida por efectos de partículas secundarias. La radiación de esta naturaleza deposita su energía en volúmenes localizados a lo largo de la trayectoria de la partícula. En estos volúmenes las trampas pueden llegar a saturarse completamente con la correspondiente disminución en sensibilidad. En esta forma, irradiaciones con alta Transferencia Lineal de Energía (LET) son menos eficientes para inducir termoluminiscencia que aquellos con baja (LET). Esto es que si se incrementa (LET) la eficiencia termoluminiscente decrece. La figura 4.4 muestra este efecto sobre un amplio margen de (LET) (41,42).

Se ha hecho notar que la supralinealidad y sensibilidad son dependientes de la Transferencia Lineal de Energía (LET) del la radiación (42). En la literatura se puede encontrar una discusión más amplia sobre las causas de esta dependencia (32,43).

4.1.3 Desvanecimiento y Estabilidad.

Una característica importante que debe considerarse en un dosímetro TLD es que tan estable es la respuesta en el medio

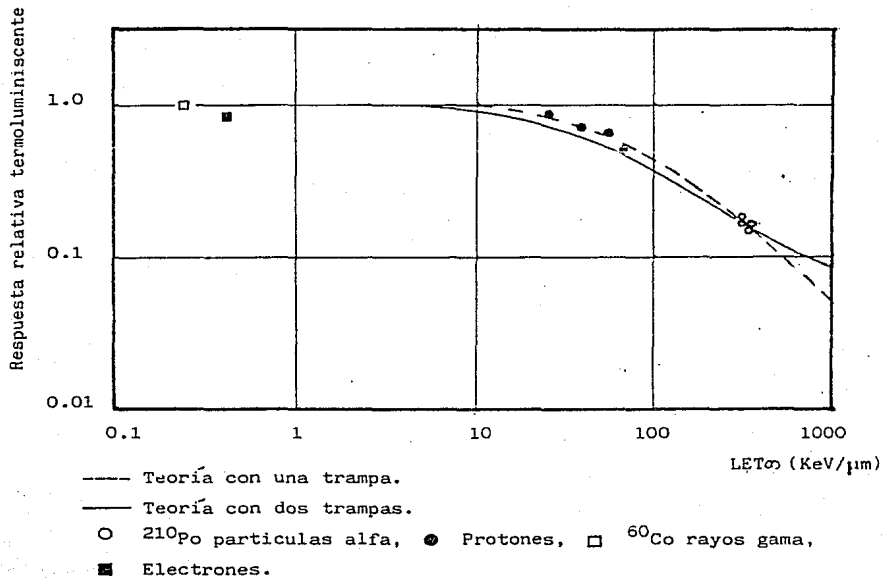


Figura 4.4. Respuesta de ^7LiF en función de la transferencia lineal de la energía^(41,42).

ambiente en el que el dosímetro vaya a operar. Por esto es necesario saber si la información puede desvanecerse antes de su lectura, ya sea por calor, luz o por otros medios. El punto principal del fenómeno de desvanecimiento térmico es que, cuando una trampa de profundidad E es demasiado pequeña, existe la probabilidad de que ésta se libere. Para propósitos de dosimetría termoluminiscente es deseable contar con un detector con la característica de tener un pico en su curva luminiscente entre los 200°C y 250°C . A este intervalo de temperaturas se asegura que la profundidad de la trampa sea lo suficientemente grande, esto es, $E > kT$ y con la despreciable probabilidad de que tenga lugar una liberación.

La pérdida de información puede ocurrir ya sea por defectos en los procesos de reacción o por el vaciado de trampas. Con el fin de entender estos efectos se han llevado a la práctica muchos experimentos pero no se ha llegado a un hecho concreto. Las referencias son para aquellos que se interesen en los procesos antes mencionados (1b, 13, 44).

Hay ocasiones en que un detector es requerido para operar a altas temperaturas. Esto es, para evitar posibles pérdidas de información en caso de accidentes. El tener picos de altas temperaturas asegura una reestimación de la señal termoluminiscente.

Otro tipo de fenómeno que provoca el vaciado de trampas que hay que considerar es el desvanecimiento óptico que resulta

mediante la estimulación óptica. Un dosímetro puede perder parte de su información cuando este es expuesto a luz solar, lámparas fluorescentes u otro tipo de lámparas artificiales. Esto es mediante la interacción de los fotones con las trampas del cristal. Para aplicaciones dosimétricas, un material es normalmente irradiado y probado mediante su exposición a una fuente de luz de cierta longitud de onda, después de un cierto tiempo éste es comparado con uno similar que haya sido mantenido en la oscuridad. Los principios de liberación de trampas mediante estimulación óptica se pueden estudiar y discutir en las referencias citadas (45,46,47).

4.1.4 Procedimientos de Templado.

Muchas de las propiedades de los dosímetros termoluminiscentes pueden ser alteradas mediante un pretratamiento térmico. Anteriormente se vio que la sensibilidad y supralinealidad son factores que dependen enteramente del tratamiento aplicado a los materiales termoluminiscentes. En caso del fluoruro de litio, LiF, se aplica un tratamiento de una hora a 400°C seguido de 24 horas a 80°C teniéndose como efecto un acrecentamiento del pico 5, comunmente llamado pico dosimétrico, y una disminución en los picos restantes. Tal comportamiento brinda propiedades benéficas ya que el pico 5 es altamente estable, moderadamente sensible, y tiene un intervalo de

linealidad bastante amplio. Debido a la reducción en tamaño de los picos de baja temperatura el pico 5 puede ser aislado fácilmente de posibles interferencias. Esto aun puede facilitarse mediante un recocido de 10 min a 100°C. que remueve muchos de los picos de baja temperatura.

El seguir este proceso de recocido por cada irradiación tiene como efecto el restablecer el equilibrio de defectos, permitiendo por tanto el uso subsecuente del dosímetro. Ciertos autores⁽⁴⁸⁾ hacen notar que, de acuerdo al conocimiento de los defectos en LiF, es posible restablecer los mismos defectos mediante la aplicación de un recocido a temperaturas de 250 - 300°C, en lugar de 400°C. Si este procedimiento se aplicase muchas de las propiedades dosimétricas no se observarían en LiF. es decir, se alterarían las propiedades de sensibilidad y supralinealidad. Parece que un recocido a 400°C es necesario si se desean propiedades reproducibles. Una posible causa de esto es que las altas temperaturas también vacíen las trampas más profundas (de mayor temperatura) que posiblemente están actuando como competidoras con respecto a las trampas dosimétricas. La razón de competición dependerá de cual de las trampas competidoras está siendo llenada. El recocido a 400°C retrocede el proceso de irradiación pero un recocido prolongado puede causar una pérdida de sensibilidad por lo que no es deseable. Condiciones óptimas de recocido para diferentes materiales han sido discutidas por Burgkhardt, Herrera y Piesch (1978)^(49,50).

Como si el procedimiento arriba mencionado no fuese demasiado complejo, se ha establecido que la razón de enfriamiento desde altas temperaturas es una variable importante⁽⁵¹⁾. Aún la razón de calentamiento durante la lectura es un factor importante.

Se ha discutido el procedimiento de recocido para LiF con el fin de ilustrar la naturaleza tan compleja del proceso y su comportamiento. Para prácticas aplicaciones dosimétricas es claro que un procedimiento tan complicado como este es la mayor desventaja en las operaciones de rutina de un detector. Es por esta razón principalmente que de materiales alternativos a LiF han sido tan buscados en las últimas décadas. Se ha logrado cierto progreso ha y ahora son disponibles nuevos fósforos están que no requieren un tratamiento muy extensivo de recocido. Un control riguroso del procedimiento de lectura es esencial en aquellos materiales que no necesiten un procedimiento de recocido o pretratamiento térmicos. Los diferentes procedimientos de recocido necesarios para dar resultados óptimos para varios fósforos están dados en la tabla 4.1.

4.3.5 Otros Factores

Hay otras características que deben ser consideradas con el fin de seleccionar un detector, como los efectos ambientales. Por ejemplo, un dosímetro no deberá cambiar sus propiedades químicas o físicas durante su uso. Esto puede requerir su encapsulación en

diseños especiales los cuales también pueden ayudar a evadir la exposición de éste a la humedad, que de hecho puede provocar un aumento en el desvanecimiento y un decremento en la sensibilidad, así como a agentes corrosivos.

Un fenómeno relacionado con la medida de exactitud es la llamada termoluminiscencia espuria. Esta es una emisión de luz que no resulta como consecuencia del proceso de irradiación del material, sino que puede tener varias causas. Una posibilidad es que una carga eléctrica dentro del cristal pueda ser transferida de trampas de mayor profundidad a trampas dosimétricas o debido a la exposición del cristal a la luz. Otra causa alternativa puede ser la Triboluminiscencia o captura de cargas en las trampas termoluminiscentes seguida de un efecto mecánico sobre la muestra (fricción por ejemplo). Muchos fósforos exhiben este fenómeno, el cual puede causar muchos errores sino se le considera. Este es más problemático para muestras en polvo que en aquellos materiales en forma cristalina, debido a interviene que un constante movimiento lo que provoca fricción en la muestra. Las precisas causas aún no son entendidas, se ha supuesto que su eliminación puede obtenerse mediante el uso de una atmósfera libre de oxígeno durante el tiempo de lectura. Se cree que la presencia de oxígeno es necesaria para obtener una respuesta triboluminiscente significativa; por esta razón la lectura es desarrollada en una atmósfera de nitrógeno o argón. Una tercera posibilidad de respuestas espurias es la

quimioluminiscencia, producida durante la lectura (probablemente por la oxidación de impurezas en la superficie de la muestra). Una atmósfera inerte ayuda a reducir este problema así como el cuidado en la limpieza y procedimientos de manejo.

Si se emplea un número muy grande de dosímetros, es necesario tener una evaluación de la reproducibilidad de éstos en su conjunto dentro del mismo grupo de manufacturación. Las inhomogeneidades del grupo de manufacturación pueden causar varios problemas lo que requiere la selección de especímenes individuales por el productor, o la calibración de cada detector por el usuario. Ciertos problemas se encuentran cuando se incluyen variaciones en la sensibilidad con respecto a rayos γ , a la respuesta de la transferencia lineal de la energía (LET) y a la sensibilidad con respecto a neutrones^(52,53). Las variaciones en la sensibilidad para los detectores TLD de serie en serie de manufactura resulta en un error máximo del 10 %. Por otra parte la calibración y selección individual dará un error de aproximadamente 1 %.

4.2 Materiales Termoluminiscentes.

La tabla 4.1 lista algunas de las principales propiedades de los dosímetros termoluminiscentes más populares. En dosimetría la temperatura del principal pico de luz es usada como la única importante, ya que no es demasiado pequeño e inestable a bajas temperaturas ambientales y no demasiado alto para que se produzca interferencia de radiación de cuerpo negro al tiempo de lectura

del dosímetro . Con el fin de obtener la máxima sensibilidad en la mayoría de los tubos fotomultiplicadores es preferible el uso de un pico de longitud de onda que se encuentre en la parte azul del espectro. Las emisiones en el rojo son impropias ya que la sensibilidad de los tubos fotomultiplicadores es pobre y la radiación de cuerpo negro puede ser de gran interferencia.

Una indicación de la respuesta a la energía es el número atómico efectivo del material. Para las medidas de dosis absorbida es conveniente comparar ésta con la del aire ($Z_{ef} = 7.64$) o la del tejido humano ($Z_{ef} = 7.42$). La razón de respuesta a 30 KeV/ ^{60}Co es también listada como una medida de comparación. La sensibilidad del detector es normalizada con respecto a LiF para una dosis dada de rayos $\gamma(^{60}\text{Co})$. Es claro que esta dependencia puede ser alterada mediante tratamientos térmicos o los tipos de radiaciones usadas. Las sensibilidades corresponden a los tratamientos térmicos especificados en la misma tabla. El intervalo lineal es tomado desde el punto en que se detecte un mínimo de dosis hasta el punto en que la supralinealidad comienza. Es claro que este intervalo también depende del tratamiento térmico y de la Transferencia Lineal de Energía de la radiación. La dosis mínima detectable debe ser considerada como una aproximación; así mismo, la saturación y la sensibilidad dependen de LET y por tanto también son difíciles de fijar. Téngase en cuenta que para cuando se llenen las trampas por completo un posible daño se puede causar al dosímetro.

Tabla 4.1. Principales características de los dosímetros termoluminiscentes.

Fosforo	Fuente Comercial	Píco de luz (°C)	Aproximada máxima emisión	Razón de respuesta a 30KeV / ^{60}Co		Sensibilidad (1)	Rango lineal (rad) (2)	Nivel de saturación (rad) (3)	Desvanecimiento Térmico y óptico	Procedimiento de pretemplado	
				Z_{ef}							
LiF:Mg, Ti	Harshaw (4)	210 (5)	425 (6)	8.14	1.3	1.0	5×10^{-3} -10^2	10^5	~5-10% anual	NA	400°C, 1 h. 80°C, 24 h. (7)
LiF:Mg, Ti, Na	D & CEC (8)	220	400	8.14	1.3	0.5	?	?	NA	NA	Inecesario
LiF:Mg, Cu, P	—	232	310	8.14	1.3	25	10^{-4} -10^3	10^4	NA	?	-250°C, 10 min.
$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: Mn	Harshaw (9)	210	310	8.14	1.3	0.4	10^{-2} -300	3×10^6	5% en 60 d.	Sen.	300°C, 15m.
$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: Cu	Panasonic (10)	205	368	7.4	0.8	8	10^{-2} -10^5	10^5	25% en 60 d.	10% en 60 d.	?
MgB_2O_7 : Dy/Tm:X (11)	—	210	480-570	8.4	1.5	7	10^{-3} -10^2	10^3	10% en 60 d.	Sen.	600°C, 1h.
Mg_2SiO_4 : Tm (12)	DNT (12)	200	380-400		4-5	40-100	10^{-3} -4×10^2	10^5	NA	Sen.	500°C, 1h.
CaSO_4 : Dy	Harshaw	220	480	15.3	10-12	30	10^{-4} -3×10^3	10^5	7-30% en 6 m.	30% en 5h.	400°C, 1h.
CaSO_4 : Tm	Matsushita	220	450	15.3	10-12	60	10^{-5} -3×10^3	10^4	7-30% en 6 m.	30% en 5 h.	400°C, 1h.
CaSO_4 : Mn	Harshaw	80	500	15.3	10-12	60	10^{-5} -3×10^3	10^4	10% por m.	?	?
CaF_2 : (natural) (13)	MBLE (13)	250	380	16.3	13-15	20-50	10^{-3} -5×10^3	10^4-10^5	NA	Sen.	?
CaF_2 : Mn	Harshaw	300	500	16.3	13-15	10	10^{-3} -10^3	10^5	7% en 24 h.	?	Inecesario
BeO (14)	BW (14)	180	330	7.13	1.4	3	10^{-2}	5×10^5	7% en 2 m.	50% en 1 h.	600°C, 15m.
Al_2O_3	CEC	250	425	10.2	-3.5	5	10^{-2} -10^2	10^5	5% en 1 m.	Sen.	?

- (1) Respuesta a rayos gamma (^{60}Co) relativa a LiF:Mg,Ti .
 - (2) Limite inferior definido por la dosis mínima detectable.
Limite superior definido por el comienzo de supralinealidad.
 - (3) Nivel al cual todas las trampas estan llenas o se produce un daño apreciable en el material.
 - (4) Harshaw Chemical Co., Ohio, U.S.A. Se vende como:
 - (i) TLD-100, conteniendo una abundancia isotópica natural (^6Li - 7.5%; ^7Li -92.5%)
 - (ii) TLD-600 (^6Li -95.62%; ^7Li -4.38%);
 - (iii) TLD-700 (^6Li -0.07%; ^7Li -99.3%).
 - (5) Pico # 5, razón de calentamiento 1.00°C/seg.
 - (6) Ver referencia 19.
 - (7) Usualmente seguido de un recocido despues de la pos-irradiación de 100°C por 10min.
 - (8) Desmarquet & and Carbonnisation Enterprise and Ceramique, France. Se vende como:
 - (i) PTL-710 (Li en abundancia isotópica natural);
 - (ii) PTL-716 (enriquecido con ^6Li ;
 - (ii) PTL-717 (enriquecido con ^7Li).
 - (9) Se vende como TLD-800.
 - (10) National Panasonic/Matsushita, Japón.
 - (11) Dopador no conocido. Protegido por patente.
 - (12) Dai Nippon Toryo Co., Japón.
 - (13) Manufacture Belge de Lamps et de Electronique, Belgica.
 - (14) Thermalox 995: Brush Wellman Inc. Ohio USA.
- ? Datos no disponibles ó no hay recomendaciones.
- NA No Apreciable.

En la tabla se hace notar la posible disipación térmica que tienen los dosímetros. El grado de pérdida de información ha sido tomado de varios reportes^(54,55). La disipación óptica depende de la longitud de onda y la intensidad con la que es atacado el dosímetro . En algunos casos solo se describe si es ó no sensible. Finalmente se describe el proceso de recocido más recomendable para un uso óptimo.

CAPITULO 5

APLICACIONES DE LA DOSIMETRIA TERMOLUMINISCENTE

5.1 Dosimetría Personal

La dosimetría personal tiene como objetivo el evaluar y limitar las dosis de irradiación sobre individuos; es decir, asegurar que la cantidad de dosis absorbida por una persona esté por debajo de los límites recomendados por el ICRP*. Estos límites corresponden a las máximas dosis-equivalentes las cuales no se espera que causen daño a la persona durante el tiempo en que este se encuentre ocupacionalmente expuesto.

Los tejidos en riesgo durante un proceso de irradiación sobre un individuo incluyen la piel, y material inmediatamente después a la piel incluyendo las gónadas, los pulmones, glándula tiroides, la superficie del hueso y su interior, la médula ósea, así como los senos de las mujeres. En la práctica, mediante el uso de un dosímetro con las mismas propiedades de la piel ($5 - 10 \text{ mg/cm}^2$) o del cuerpo ($300 - 1000 \text{ mg/cm}^2$), se puede estimar la dosis recibida por la piel o gónadas. Mediante este mismo dosímetro se puede hacer una estimación de la dosis recibida por la médula ósea, los ovarios de la mujer y otros órganos profundos. Con respecto a todos estos tejidos el objetivo último de la dosimetría personal es el limitar la probabilidad de

* International Commission of Radiation Protection and Measurements

efectos estocásticos. Esto es que la dosis absorbida sea tan baja como sea posible nunca excediendo los límites fijados por el ICRP, y prevenir los efectos estocásticos manteniendo las dosis por debajo de todos los umbrales conocidos⁽⁵⁶⁾.

Los dosímetros termoluminiscentes usados en dosimetría personal pueden ser clasificados de acuerdo con su principal función. En dosímetros cutáneos y corpóreos que son usados con el fin de evaluar las dosis absorbidas por la piel y el cuerpo, debido a los rayos gamma y electrones (beta). Para dosímetros cutáneos, la dosis absorbida es medida a un espesor de 7mg/cm^2 . Para dosímetros corpóreos el espesor se encuentra entre $300-1000\text{mg/cm}^2$ y por lo tanto su único objetivo es el de medir radiación gamma o rayos X $> 15\text{KeV}$. Adicionalmente, el requerimiento de dosímetros en las extremidades es de suma importancia si se cree que los dosímetros en forma común no dan una verdadera indicación de la dosis absorbida en las extremidades, por ejemplo los dedos de las manos. Entre menos se conozca el campo de irradiación más complicado deberá ser el sistema dosimétrico. En caso de tener un flujo de neutrones se deberán utilizar dosímetros capaces de medir cuantitativamente la dosis absorbida. Estos dosímetros pueden ser sensibles tanto para rayos gamma como para neutrones y mediante el uso de filtros se puede obtener información acerca de la energía de la radiación. Una alternativa al uso de filtros puede ser el uso de materiales que sean equivalentes al tejido humano como LiF o $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ y otro material que sea dependiente a

la energía como CaF_2 . Con lo anterior se puede evaluar la dosis y el tipo de energía de la radiación en particular.

Los problemas aumentan con la dosimetría de las partículas beta. Es claro que este tipo de radiación no puede penetrar los tejidos internos pero puede afectar tejidos como el de los ojos, contribuyendo con el paso del tiempo a la posibilidad de obtener cataratas. Algunos reportes sobre la dosimetría de partículas β hacen referencia al uso de capas ultradelgadas. Métodos como la deposición de granos en discos⁽⁵⁷⁾, mediante el uso de aditivos como grafito para limitar la salida de energía de la superficie de los granos⁽⁵⁸⁾ o granos de LiF incorporados a una matriz de poliéster⁽⁵⁹⁾ y también mediante métodos de difusión de boro en LiF a una profundidad de $2\text{mg}/\text{cm}^2$ ⁽⁶⁰⁾ son usados para la dosimetría de rayos β .

Los fotones de baja energía son también un problema para el cálculo de la dosis absorbida. Esto es debido a que la respuesta del detector depende de la energía, su forma y espesor que éste tenga, así como de la autoabsorción debida a la bolsa del detector. Los materiales de alta Z_{ef} no deberán ser usados para el intervalo de bajas energías. Para fotones de alta energía, esto es mayores de 1MeV , la respuesta de la mayoría de los detectores decrece. El uso de filtros equivalentes al tejido humano puede corregir la respuesta a la energía.

Con la proliferación de reactores nucleares la detección de neutrones en el campo de la dosimetría personal es de gran

importancia. Hay varias posibilidades para la medida de la dosis absorbida debida a neutrones, dependiendo de la energía de los neutrones y de la naturaleza del campo de irradiación. Esto puede depender a su vez de si es un campo de neutrones puros o un campo compuesto por rayos gamma y neutrones⁽⁵³⁾. Para los propósitos de este trabajo será suficiente mencionar que $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ y LiF son excelentes detectores de neutrones térmicos. En un campo mixto, gamma/neutrón, con la combinación de un material sensible a neutrones, ^6LiF , y uno no sensible a ellos como ^7LiF es posible separar el campo mixto. Como método alternativo para la dosimetría de neutrones, se puede hacer uso de CaSO_4 que es altamente sensitivo a partículas cargadas mezclado éste con ^6Li que es altamente sensitivo a neutrones⁽⁶¹⁾.

Neutrones rápidos pueden ser detectados mediante la activación neutrónica. Aquí la actividad de cierto isótopo radiactivo creado durante la irradiación neutrónica crea en el material fosforescente la respuesta termoluminiscente. Un ejemplo con neutrones rápidos es la reacción $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ ⁽⁶²⁾ donde el sulfato mezclado con CaSO_4 : Dy resulta en un detector sensible a neutrones. ^{32}P es un emisor beta ($T_{1/2} = 14.22$ días) en el material y su contenido en éste resulta en la dosis neutrónica.

El más popular de los métodos para la detección de neutrones rápidos es mediante dosímetros albedo. Se define neutrones albedo a aquellos neutrones que re-emergen del cuerpo después de haber sido moderados por éste mediante dispersión múltiple. Estos

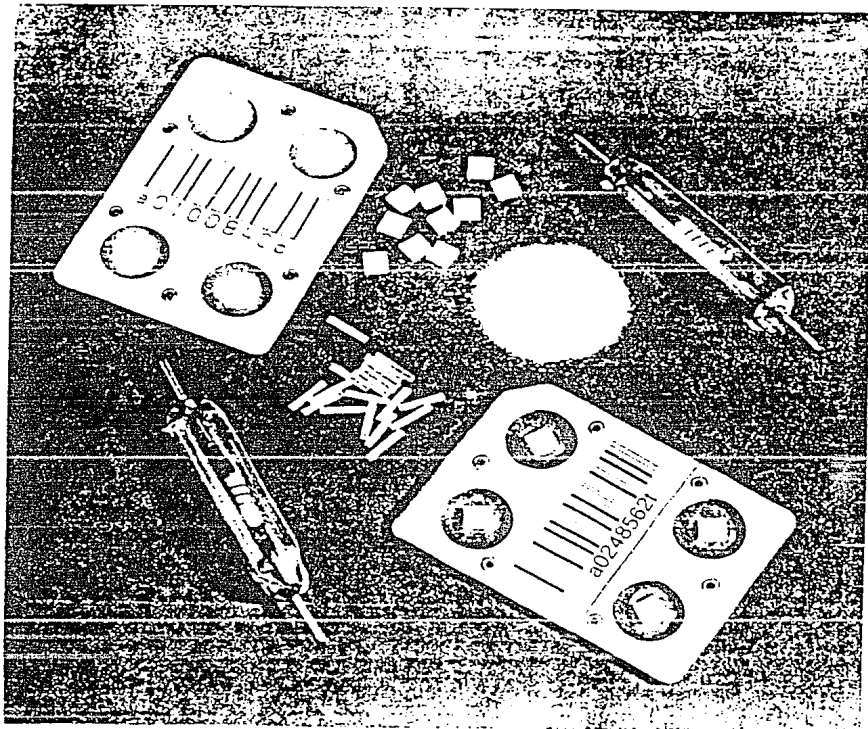


Figura 5.1. Diferentes tipos de formas de los materiales termoluminiscentes

neutrones pueden ser detectados por dosímetros sensibles a neutrones lentos. Los factores de corrección para convertir el flujo en dosis, y la fracción de neutrones incidentes que emergen como térmicos o lentos, son dependientes de la energía y por tanto los dosímetros albedo lo son. Es por esto que son usados dosímetros adicionales para proveer el factor de corrección en la energía de los neutrones incidentes (63). La figura 5.1 muestra los tipos y formas de dosímetros comunmente usados en dosimetría personal que incluyen desde bulbos hasta tarjetas.

5.2 Monitoreo Ambiental

El monitoreo ambiental consiste en la medida de la radiactividad que es debida a la presencia de materiales radioactivos en el medio y a los rayos cósmicos. Los materiales usados en monitoreo ambiental requieren un conjunto diferente de características de trabajo en comparación con aquellos usados en dosimetría personal. Las dosis por medir son demasiado pequeñas y requieren periodos muy largos. Lo anterior significa que los dosímetros requieren una alta sensibilidad y un desvanecimiento térmico y óptico estable y bajo. Estos dosímetros en ocasiones necesitan estar a la intemperie por lo que requieren una alta resistencia a los ataques químicos y a la corrosión así como a la humedad. Un dosímetro ambiental puede ser definido como aquel que es colocado en el ambiente con el objetivo de evaluar la dosis absorbida en el aire debido a la radiación. En general sus

características de trabajo serán diferentes a los usados en dosimetría personal, excepto tal vez en homogeneidad, estabilidad y efectos debidos a los cambios climaticos.

Los principales requerimientos de un dosímetro ambiental (alta sensibilidad y bajo desvanecimiento) son exhibidos por la mayoría de los materiales listados en la tabla 4.1 aunque los efectos ópticos y de inestabilidad para periodos de lectura muy largos crean dificultades en su aplicación. CaF_2 y $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ son los más usados pero se debe poner atención al grado de auto-irradiación que debe ser mínima, y a la dependencia en la energía del material. Para remediar esta situación se requieren filtros para eliminar la dependencia en la energía. Para ciertos materiales se necesita una protección contra la humedad y la luz solar. La localización del dosímetro en el campo es de suma importancia ya que el colocar el dosímetro en objetos muy densos o en el piso provocará anomalías direccionales y su recubrimiento y protección darán una subestimación de la dosis por lo que deberán ser evitadas.

La encapsulación de los detectores en una bolsa , como en dosimetría personal, no es requerida en monitoreo ambiental; pero si los dosímetros necesitan ser durables y fácilmente identificables es posible que sea necesaria. Un dosímetro popular es aquel detector sellado por un bulbo el cual es llenado con un gas inerte que ademas incluye un pequeño calentador para realizar la lectura. Un ejemplo de este sistema se muestra en la figura

5.1

Piesch(1981)(64) sugiere un procedimiento de calibración y medida para la evaluación de dosis ambientales usando TLD. La figura 5.2 muestra el procedimiento a seguir donde el grupo original de dosímetros es preirradiado y un apropiado tratamiento de recocido es usado en general. Este grupo es dividido en cinco subgrupos, el primero (de por lo menos 10 dosímetros) es usado para el proceso de calibración. Estos son almacenados en un blindaje hasta que el proceso de calibración tome lugar en el laboratorio. El segundo grupo (mínimo de 10) son usados para evaluar la dosis al nivel cero; por lo que estos no son irradiados y son contenidos en un blindaje. Los otros tres grupos son llevados al campo de trabajo. A uno de éstos grupos se le aplica una preirradiación dada en el laboratorio antes de ser transportados al lugar de trabajo donde serán sellados y protegidos mediante un blindaje; éstos son usados para evaluar el grado de desvanecimiento. Un segundo grupo es también transportado al lugar de trabajo y blindado. Este será usado para evaluar la dosis acumulada durante el tránsito al lugar de trabajo. El grupo final es usado para la evaluación de la dosis ambiental. Después del periodo de mediciones los dosímetros son transportados al laboratorio y cada uno es tratado con el mismo procedimiento de posirradiación y tratamiento de recocido que fue aplicado al grupo usado para la calibración y lectura de

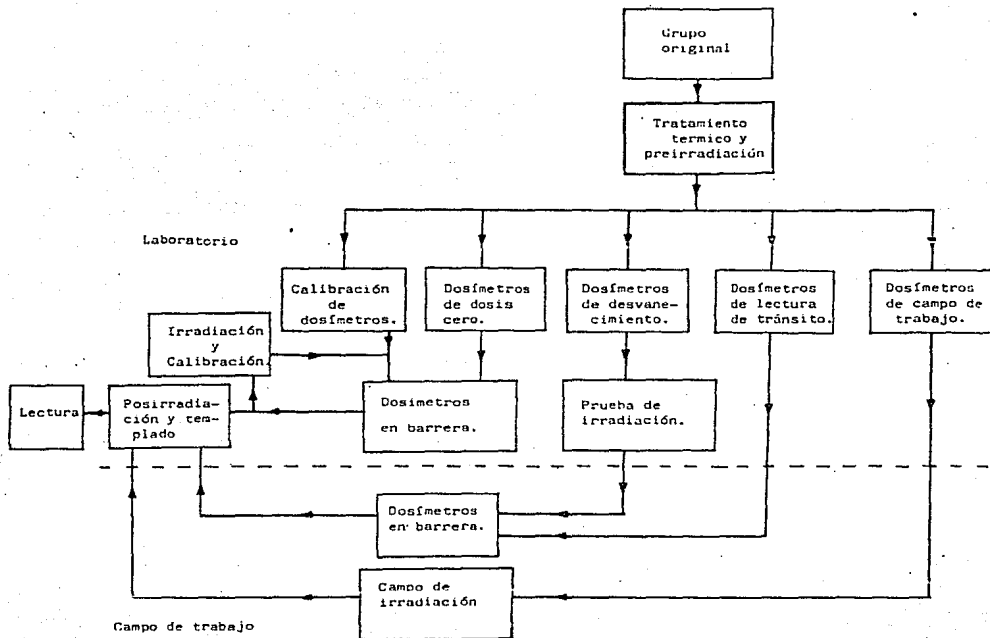


Figura 5.2. Procedimiento de calibración y medidas para el monitoreo ambiental⁽⁶⁴⁾.

cero. A continuación de este tratamiento, los dosímetros de medida en el campo son leídos. Este largo pero cuidadoso procedimiento provee de datos necesarios para hacer las correcciones por desvanecimiento y otra clase de señales que puedan ocurrir por otra fuente que no sea la que se ha establecido .

5.3 Aplicaciones Medicas

El mayor uso de la dosimetría termoluminiscente en medicina es en la medida de la dosis absorbida por un paciente durante un tratamiento terapéu o en un diagnóstico radioló, y en calibración de fuentes de irradiación y uniformidad de exposición de éstas.

El objetivo del tratamiento terapeutico es el de irradiar tejidos neoplásticos (cancerígenos) con una dosis precisa de radiación, la cual ha sido previamente preescrita por un doctor o especialista, y al mismo tiempo el de asegurar que la dosis absorbida por tejido sano adjunto al neoplástico sea mínima en lo posible. La dosis recibida puede ser calculada por un físico de hospital, usando dosímetros de "tránsito" (por correo), o métodos más avanzados como la tomografía computarizada, pero la ventaja de los dosímetros termoluminiscentes (TLD) es que la dosis impartida puede ser evaluada ya sea indirectamente con un "fantasma" o directamente mediante el uso de técnicas en vivo(65). La exactitud en la evaluación de la dosis requiere una mínima incertidumbre de aproximadamente 5% debido a que en caso de ser mayor puede afectar negativamente los resultados del

tratamiento.

El Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) en cooperación con el Organismo Mundial de la Salud (OMS) operan un servicio postal de dosimetría termoluminiscente basado en LiF para prácticas radioterapéuticas. Al Organismo Internacional de Energía Atómica le concierne la exactitud con la que los trabajos de dosimetría de unidades terapéuticas son llevados a cabo alrededor del mundo. El servicio empezó en 1966 y sus resultados han sido publicados por Eisenlohr y Jayaraman(1977)⁽⁶⁶⁾.

Los dosímetros termoluminiscentes en comparación con otros métodos están situados idealmente ya que en muchos casos no existen métodos alternativos de evaluación. Los dosímetros TLD son diminutos, aproximadamente equivalentes al tejido humano y sensitivos. Ellos pueden estar convenientemente unidos, o localizados internamente, en el paciente y son fácilmente manipulables.

Un importante requerimiento de los dosímetros TLD cuando son usados en aplicaciones clínicas es que éstos sean equivalentes al tejido humano (tejido-equivalente). Por tanto debe ser considerada la energía de los fotones* y la dependencia en LET de estos materiales. Las energías de la radiación usadas en radioterapia pueden variar entre los KeV y varios MeV dependiendo de la fuente de irradiación. Las energías de los electrones pueden ser tan altas como 40 MeV. Para medidas en vivo no es posible cubrir el detector con filtros apropiados por lo que es

necesario que los dosímetros sean tejido-equivalente. BeO es muy favorecido dado su alto potencial tóxico y como resultado LiF y especialmente $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ son preferidos. La habilidad de alterar la respuesta a la energía por parte de $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ mediante el control de su concentración de impurezas es particularmente útil en radiología donde las energías de los rayos X usados pueden resultar en grandes errores si no se tiene en consideración la respuesta a la energía del material. En medicina LiF y $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ son capaces de cubrir un ancho rango de dosis (desde 10^{-3} hasta 10^2 rads en radiología y por encima de 10^3 en radioterapia), aunque a altas dosis cercanas al final del intervalo lineal se requiere una corrección por problemas de supralinealidad. Para radioterapia $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ puede ser útil debido a su alta sensibilidad; aunque es dependiente de la energía, su respuesta en el intervalo de 15-35 KeV a rayos X es aproximadamente constante, sobrestimando la dosis por un factor de 10⁽⁶⁷⁾.

La forma de los dosímetros, especialmente en radioterapia, generalmente tiende a ser "chips" o rodillos, aunque son usadas también en polvo (menos popular) y otras formas. Cuando se selecciona la forma del dosímetro se requiere establecer en primera instancia la aplicación precisa que éste va a tener. Frecuentemente se ha observado que entre más diminuto sea éste mejor, ya que cumple con los requerimientos de equilibrio electrónico. Esto es particularmente necesario si los gradientes de dosis tienen que ser evaluados lo que requiere dosímetros muy

sensitivos.

Los dosímetros TLD en el área de la medicina son muy usados en dos formas. Mismas que corresponden a medidas en vivo y medidas en fantasmas. El propósito de las medidas en vivo es el de verificar la dosis recibida por el paciente durante el tratamiento radioterapéutico o durante el diagnóstico radiológico. Esto puede ser subclasificado en cuatro diferentes tipos de medidas. Estas son: (i) Medidas de la dosis entrante. Usada para evaluar la salida de la fuente, la distribución de la dosis a través del cuerpo del paciente, y la posición de cualquier barrera de protección. (ii) Medida de la dosis de salida, para checar la dosis absorbida por el cuerpo del paciente. (iii) Medida de la dosis en cavidades internas; esta se usa para medir directamente la dosis recibida por un órgano en particular. (iv) Medida de la dosis de órganos protegidos. Las dosis de entrada y de salida pueden ser medidas adheriendo los dosímetros, sellados en material opaco; por ejemplo polietileno, a las superficies incidentes y posteriores al paciente. La medida de la dosis en cavidades interiores es hecha mediante el sellado del dosímetro en un cateter que es insertado en cierta posición dentro del cuerpo del paciente. Este tipo de medidas es exclusiva de los dosímetros TLD.

Es un hecho que aquellos que realizan medidas en fantasmas para fines radioterapéuticos tienen mejor control sobre la administración de la dosis que aquellos que realizan sus medidas

en aire. Las medidas de la distribución de dosis en el fantasma son una necesidad con el fin de evaluar correctamente la dosis recibida por el paciente. Esto es debido a que existe una considerable dispersión de la radiación incidente sobre el dosímetro cuando éste es usado en vivo y tanto la energía como la dirección de la radiación difieren de la radiación incidente. Como resultado, es necesario simular estos efectos usando el dosímetro en un fantasma.

Un beneficio muy grande puede ser obtenido mediante el uso de fantasmas que no sólo sean simples y homogéneos con agua o agua-equivalente, sino que sean contruidos de tal forma que dupliquen lo mayor posible las partes del cuerpo humano⁽⁶⁸⁾. Estos fantasmas antropomorfos son réplicas del cuerpo humano y contienen el esqueleto de éste y son contruidos con órganos, músculos y el tejidos equivalentes. Además éstos pueden incluir canales y otras particularidades del cuerpo.

Los fantasmas atropomorfos pueden ser usados tanto en radioterapia como en diagnóstico para evaluar la dosis absorbida por varias partes del cuerpo mediante la colocación de éste en la misma forma en la el paciente se encontrará. La dosis podrá ser entonces determinada mediante el uso de detectores termoluminiscentes tanto interiormente como exteriormente.

Sería instructivo ilustrar los principios de las mediciones en vivo y mediciones en fantasmas mediante el uso de TLD tanto en radioterapia como en diagnóstico radiológico mediante la

discusión de algunos ejemplos específicos de casos en los que los dosímetros TLD han sido de gran utilidad. Recientemente se han descrito usos de $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ tanto en polvo⁽⁶⁹⁾ como en forma de disco⁽⁷⁰⁾ para el tratamiento de un raro neoplasma en la piel (cáncer en la piel). El tratamiento para estas condiciones requiere una irradiación de cuerpo entero o parcial, que normalmente se realiza con electrones, con el fin de atacar pocos milímetros de la piel con un mínimo de penetración a los órganos internos. En estos casos es muy difícil calcular la dosis recibida por los pacientes, pero los dosímetros TLD brindan de un método para evaluar ésta y su distribución sobre el cuerpo. Los dosímetros son colocados en polietileno negro y adheridos a la piel del paciente en los puntos requeridos. Puede conseguirse un tratamiento a esta enfermedad conseguido mediante la irradiación en pulsos de electrones. Los dosímetros TLD son capaces de medir y expresar la no uniformidad de la dosis absorbida causada por los diferentes tipos y formas de orientación y tamaño del cuerpo. Muy difícilmente pueden ser llevadas a cabo medidas de esta índole por otro método.

Una segunda aplicación médica en la que los dosímetros TLD han sido de un alto beneficio es en el tratamiento de Carcinoma Cervical. El tratamiento radical de esta enfermedad requiere una dosis alta y por lo tanto es inevitable un efecto nocivo a los órganos adjuntos. Es por esto que hay una necesidad importante de restringir reacciones no deseadas que al mismo tiempo controlen

la enfermedad. La dosis recibida por el paciente es evaluada usando una técnica intracavitaria en vivo con dosímetros TLD. El tratamiento usual de esta enfermedad involucra la insertación de una muestra radiactiva (radio 226 o radón 222) en el útero y vagina⁽⁷¹⁾. La dosis recibida por los tejidos adicionales puede ser calculada mediante la toma de una radiografía en el área (con la fuente en posición) y notando las varias distancias de tejidos particulares con respecto a la fuente. De cualquier forma usando dosímetros TLD la dosis recibida puede ser medida sellando los dosímetros en catéteres apropiados e insertandolos en las partes deseadas. La posición de los catéteres puede ser notada mediante el uso de plomo como marcador en una radiografía.

Un problema que frecuentemente se encuentra en esta técnica es que los dosímetros tienen que ser insertados en la sala de operaciones junto con la fuente radiactiva. Esto de hecho representa un riesgo para el personal y además tenemos que cuando el paciente regresa a la sala de recuperación por un largo periodo (24-36 horas) la relajación subsecuente y cambios en la posición del paciente pueden cambiar las distancias de los dosímetros con respecto a la fuente y ser estas distintas a las vistas en la radiografía. Para solucionar este problema, un nuevo sistema de carga de la fuente radiactiva fue desarrollado donde el aplicador (vaginal/uterino) es insertado cuando el paciente está en la sala de operaciones, pero no así la fuente. Esta es insertada hasta que el paciente haya sido acomodado en su

posición habitual y esté relajado en la sala de recuperación. La fuente (^{137}Cs) puede ser removida a cualquier tiempo para permitir la entrada de personal y visitas con el fin de atender al paciente. Después del periodo prescrito por el médico, los dosímetros colocados en los catéteres son removidos y la dosis recibida en los varios órganos puede ser determinada. Este sistema ha resultado en un decremento significativo en el daño a tejidos adjuntos. Las diferencias encontradas por este sistema demuestran las ventajas de los dosímetros TLD⁽⁷²⁾.

En el diagnóstico radiológico los fantasmas son frecuentemente usados con el fin de evaluar la dosis recibida por el paciente con el objetivo de minimizar la dosis a individuos en este tipo de tratamientos. Varios ejemplos que usan dosímetros TLD en fantasmas pueden ser encontrados en los que la evaluación de dosis ha sido llevada a cabo. Como ejemplo Wall y colegas⁽⁷³⁾ usan un fantasma Rando y $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ para estimar el máximo en la dosis absorbida por la piel en pacientes durante la irradiación.

McKlveen⁽⁷⁴⁾ utiliza ambos métodos, en vivo y con fantasma, para evaluar la dosis absorbida debida a rayos X recibida por pacientes dentales durante el diagnóstico. Una máscara elástica para ser usada por los pacientes y el fantasma fueron adaptados con dosímetros TLD y tanto pacientes como el fantasma fueron sujetos a una exposición de cara completa de rayos X de diferentes energías. Las localidades de interés incluyen la piel, ojos, maxilar superior e inferior, y la glándula tiroides.

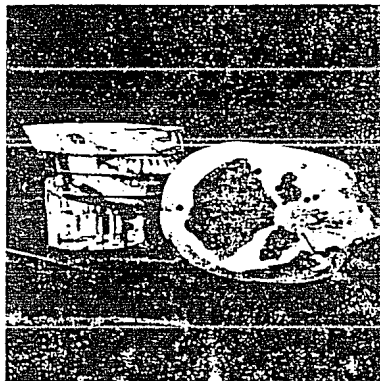
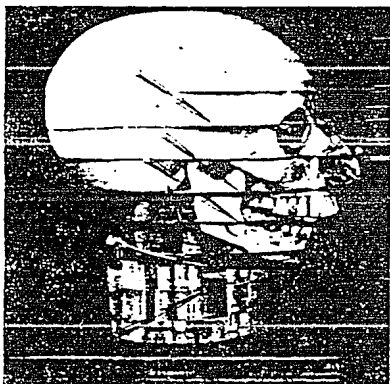


Figura 5.3. Máscara usada para evaluar la exposición por pacientes dentales debida a rayos X. Nótese la colocación de los dosímetros tanto en su interior como superficialmente. Los dosímetros usados en este fantasma son del tipo de rodillo. Aplicaciones análogas son usadas en el cuerpo entero.

CAPITULO 6

INSTRUMENTACION

Los equipos modernos de lectura termoluminiscente pueden variar entre lo más simple a lo más sofisticado. El núcleo de todos los diseños es el sistema de detección, el calentador o estufa y la unidad de control de temperatura. Es claro que los diseños individuales de cada uno de estos sistemas es variado de acuerdo a las aplicaciones específicas que se deseén. El uso extensivo de la computadora como unidad de control es cada vez más y más popular tanto en los grupos de investigación como en los equipos comerciales. Un arreglo esquemático generalizado se muestra en la figura 6.1.

Una descripción general de algunos de los componentes necesarios para la detección de la termoluminiscencia serán descritos pero las referencias que tratan específicamente con instrumentación son de buena ayuda para aquellos que quieran profundizar en el tema (75,76).

Frecuentemente el proceso de calentamiento de los dosímetros termoluminiscentes es dividido en tres diferentes pasos (75):

- 1) La pre-lectura: ésta es aplicada para remover los picos de la curva de luz más bajos. Esto es, vaciar las trampas de baja energía (por debajo de los 100°C sujetos a un fuerte desvanecimiento).

- 2) El procedimiento de lectura en sí.

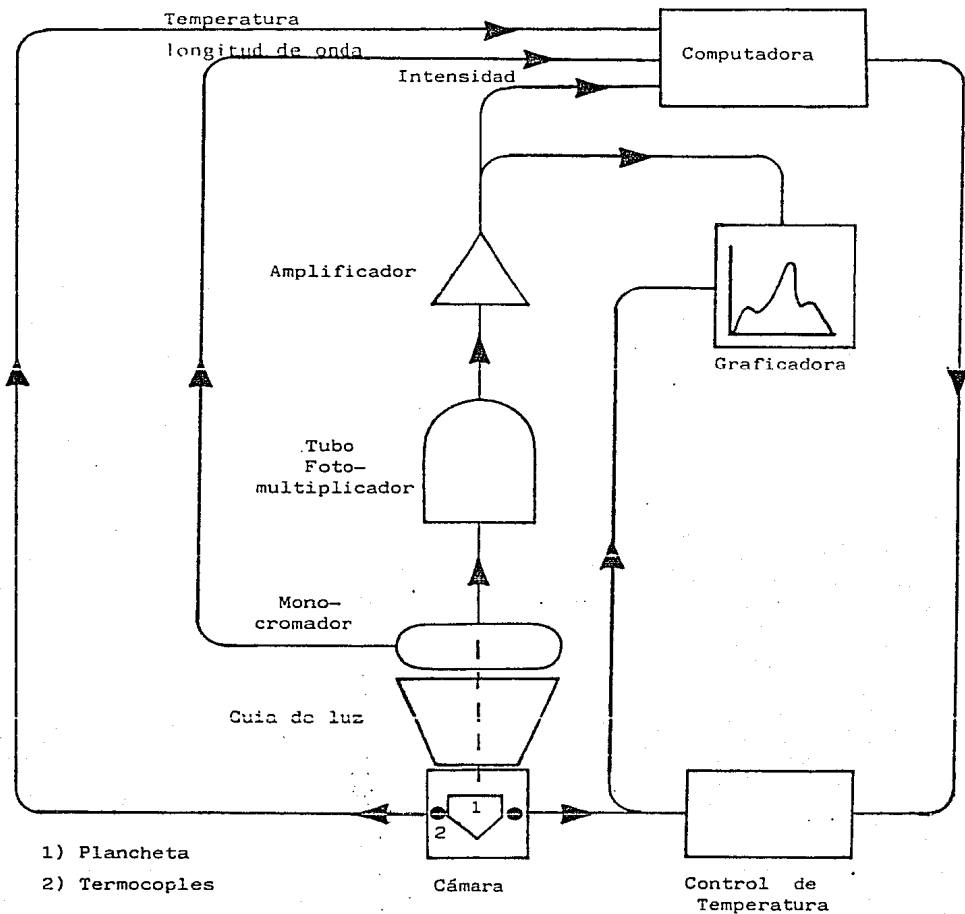


Figura 6.1. Diagrama de bloques de un arreglo experimental para el análisis de curvas termoluminiscentes.

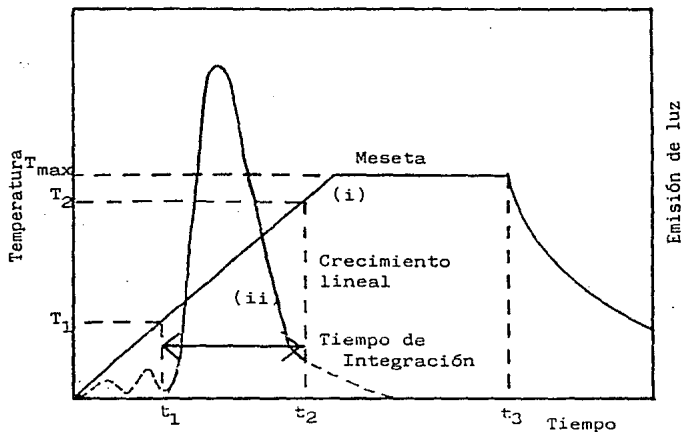


Figura 6.2. Calentamiento lineal combinado con un intervalo constante de temperatura. La temperatura en función del tiempo puede ser variada. (i) temperatura, (ii) señal de luz⁽⁷⁵⁾.

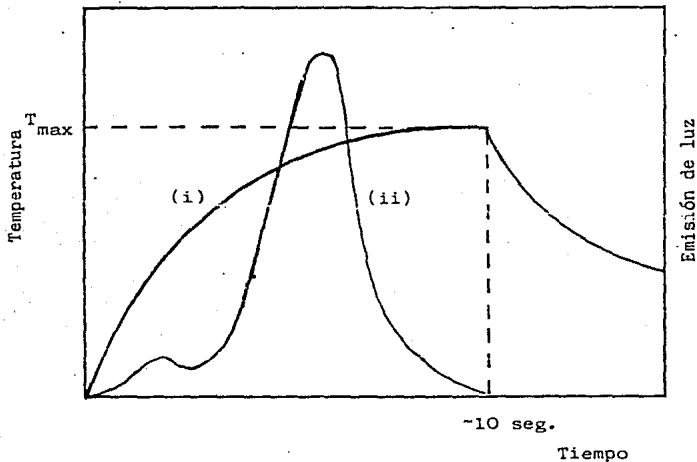


Figura 6.3. Calentamiento no lineal. El máximo de temperatura y medida del tiempo son totalmente variables. (i) temperatura, (ii) señal de luz⁽⁷⁵⁾.

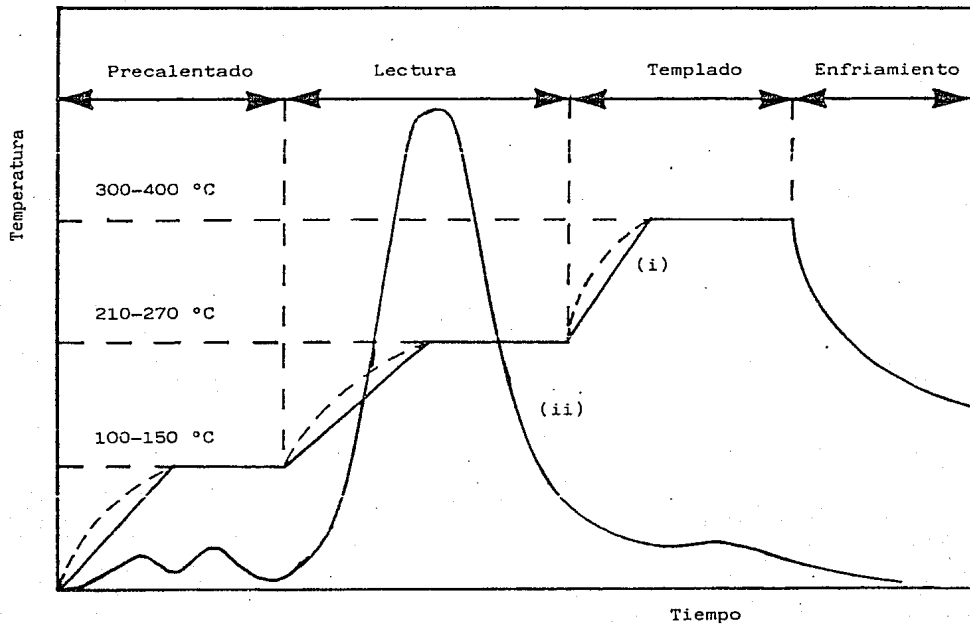


Figura 6.4. Combinación del precalentamiento, lectura y recocido en un solo ciclo de lectura. Las áreas de temperatura constante pueden ser obtenidas linealmente o no linealmente. (i) temperatura, (ii) señal de luz⁽⁷⁵⁾.

3) La pos-lectura (o pre-irradiación) o procedimiento de recocido aplicado con el fin de remover la señal residual del dosímetro y/o restaurar la distribución de trampas en la red cristalina y así restaurar las propiedades originales del dosímetro.

Estos tres pasos son frecuentemente aplicados separadamente ya sea usando muflas para (1) y (2) o en ciertos casos se pueden combinar en un sólo ciclo de lectura y recocido. Para esto el instrumento de lectura deberá estar programado de antemano.

Para propósitos de investigación es necesaria una relación lineal entre la temperatura y el tiempo. Para medidas rutinarias esta relación es demasiado lenta y por lo tanto consume demasiado tiempo. Es preferible un rápido incremento en la temperatura con una relación no lineal.

6.1 Criostato

El criostato necesario para obtener curvas de luz entre la temperatura ambiente y cerca de 600°C tiene un diseño modesto. La cámara encierra al calentador y necesita ser capaz de ser evacuada a una presión moderada (10^{-1} - 10^{-3} torr) y ser llenada con un gas inerte. El uso de trampas para agua y oxígeno son necesarias en la línea de entrada para filtrar estos componentes del gas de llenado. Esto es con el fin de reducir señales espurias que puedan provocar una señal no reproducible. El gas de llenado puede ser de alta pureza; comunmente se usa nitrógeno o

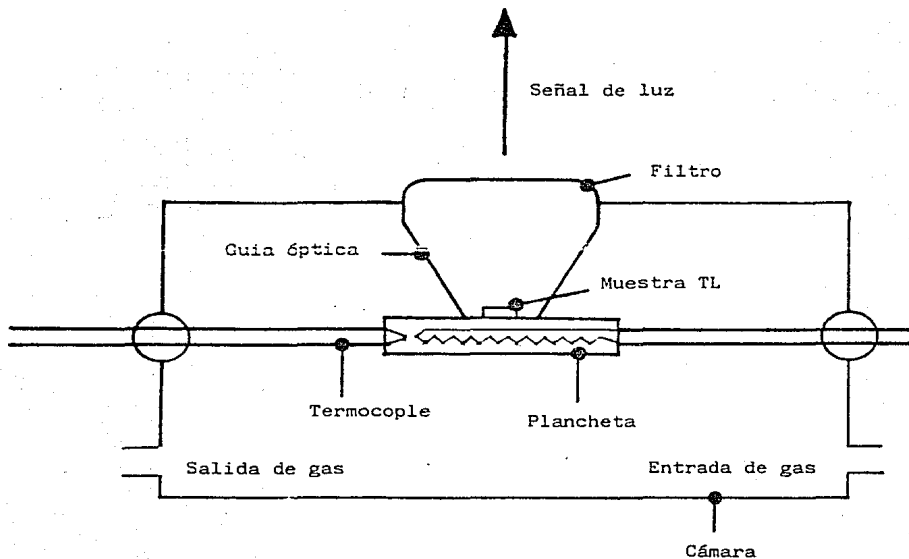


Figura 6.5. Representación esquemática de un cámara típica para la lectura de dosímetros termoluminiscentes a temperatura ambiente. El cono reflector tiene el fin de reducir la señal debida a la radiación de cuerpo negro emitida por la plancheta y ayudar a la colección de luz.

argón. El sistema de vacío, de hecho, solo consta de una bomba mecánica rotatoria capaz de alcanzar mínimas presiones.

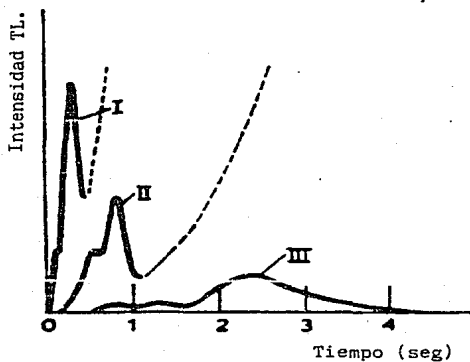
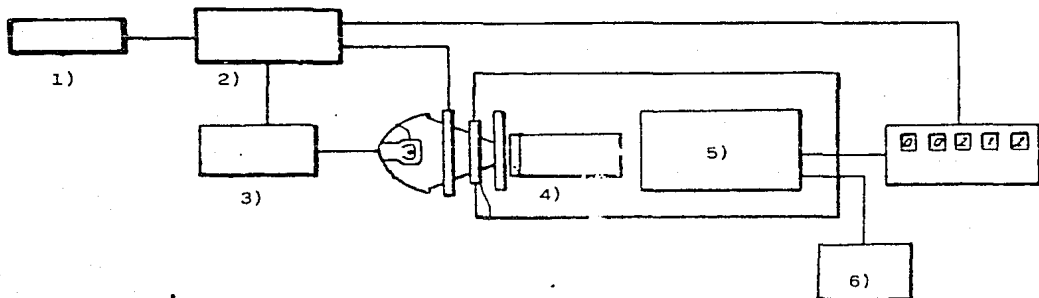
Una consideración final para el diseño de la cámara es la posición del detector de luz (comunmente un tubo fotomultiplicador) con respecto a la muestra. Muchos de los diseños tienen montado el calentador horizontalmente y el tubo verticalmente, aunque algunos dispositivos usan el diseño opuesto. El tubo fotomultiplicador debe estar suficientemente cerca de la muestra para una buena colección de luz, pero no tan cerca que pueda dañarse por el calor emitido por la plancheta. Una representación esquemática de una cámara es mostrada en la figura 6.5.

Plancheta o Calentador: Tal vez la parte más crítica del crióstato es el calentador. El método más común para elevar la temperatura de la plancheta es mediante el paso de corriente eléctrica a través de esta. Este método es el más popular. La plancheta es una lámina delgada con dimensiones típicas de 0.025 cm. por (1-2) cm. por (4-5) cm. La temperatura de la plancheta puede ser medida mediante el uso de termocoples soldados en la parte baja de ésta y directamente debajo de la muestra. La ventaja de la plancheta sobre otros arreglos es que el calentador térmico (comunmente la misma plancheta es el calentador térmico) es de bajo peso y puede ser obtenido un control fino de la temperatura. La baja inercia de la plancheta provee

razonablemente de altas razones de calentamiento ($10^{\circ}\text{C}/\text{seg.}$) para ser usadas y facilita eficazmente el enfriado al finalizar la lectura. Una desventaja es que la plancheta puede corbarse o pandearse (deformarse) a altas temperaturas resultando en ocasiones en una permanente distorsión de la distancia entre la muestra y el tubo fotomultiplicador que consecuentemente afecta la señal medida. Un contacto térmico insuficiente entre la plancheta y la muestra da como resultado una señal irreproducible. Esto es una desventaja ya que depende de la conductividad térmica de los dosímetros que en general son buenos conductores térmicos. El hecho de que tengan geometrías definidas facilita su contacto con la plancheta.

Para aplicaciones en dosimetría el uso de un método reciente de lectura es muy conveniente. Este método, en lugar de usar una plancheta y corriente eléctrica para su calentamiento, usa una fuente de luz infrarroja como fuente de calor. Existen en la práctica dos métodos; uno mediante el uso de una lámpara infrarroja y el otro mediante un rayo laser. Las figuras 6.6 a 6.8 muestran los rasgos principales de ambos sistemas.

Estos dispositivos son capaces de calentar la muestra a varios cientos de grados en menos de un segundo. Es claro que no son útiles para el análisis termoluminiscente pero la razón de calentamiento asegura una larga señal termoluminiscente y por tanto la detección de pequeñas dosis. Una desventaja de estos dispositivos es la alta emisión de radiación de cuerpo negro que



- 1) Interruptor
- 2) Control de sequencia
- 3) Fuente de poder
- 4) Gui. óptica
- 5) Fotomultiplicador
- 6) Fuente de voltaje

Figura 6.6. Sistema infrarrojo de lectura de dosímetros TLD mediante el uso de una lámpara como fuente de calor⁽⁷⁷⁾.

- 1) Plato portador de dosímetros
- 2) Cobertor de dosímetros
- 3) Lámpara infrarroja
- 4) Filtro de silicon
- 5) Deposito de dosímetros

- 6) Código de lectura
- 7) Fotomultiplicador
- 8) Elemento dosimetrico
- 9) Luz de referencia
- 10) Banda de guia

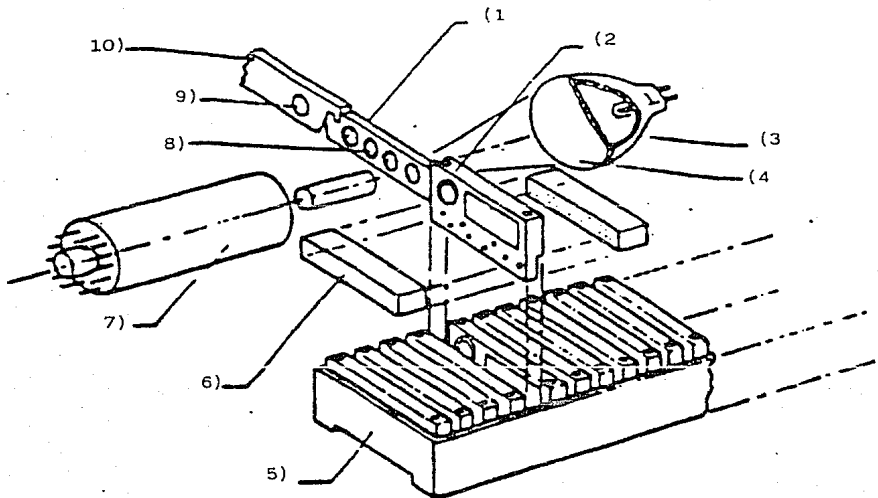


Figura 6.7. Diseño de un sistema de lectura de dosímetros mediante el uso de una lámpara infrarroja⁽⁷⁸⁾.

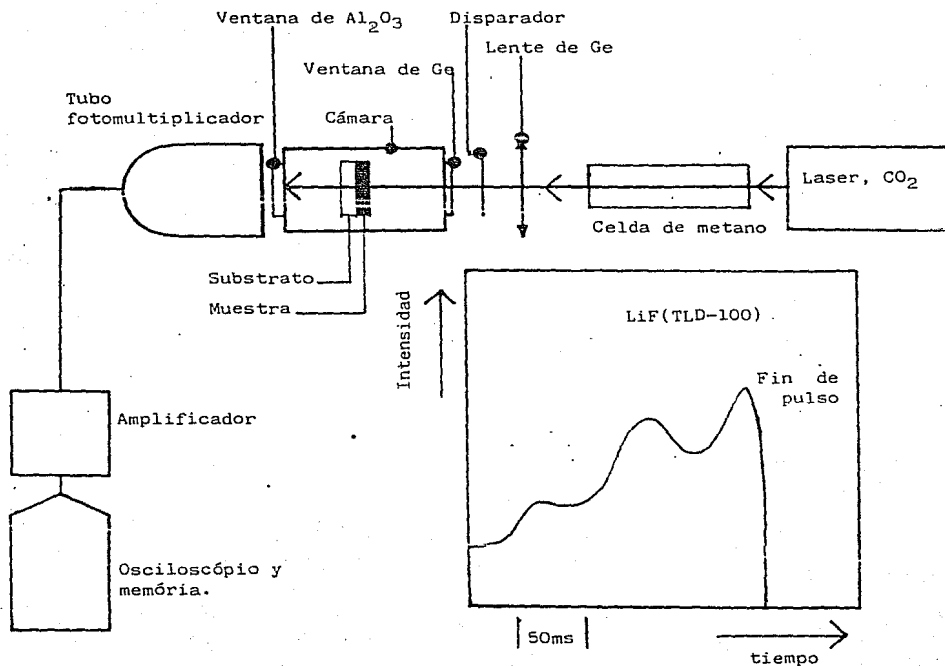


Figura 6.8. Representación esquemática del sistema de lectura por medio de rayo láser. El cuadro muestra la señal obtenida por este sistema (79).

sólo es eliminada mediante el uso de filtros, pero aun así la técnica tiene un alto potencial de uso para bajas dosis y rápido procesamiento de dosímetros de película delgada^(77,79).

Otro método comúnmente utilizado usa como fuente de calor un gas inerte a alta temperatura que se introduce en la cámara. Este método tiene la ventaja de eliminar inhomogeneidades en la muestra que de hecho son inevitables en los otros métodos de calentamiento de contacto. Téngase en cuenta que un fuerte control de la presión del gas debe mantenerse con el fin de que un mínimo de luz sea absorbida por el gas .

6.2 Detección de luz

Indudablemente el dispositivo más conveniente para medir la intensidad de la emisión termoluminiscente es el tubo fotomultiplicador de los cuales hay dos posibles modos de operación que son en corriente directa y conteo de fotones.

Corriente Directa:

La mayoría de los tubos fotomultiplicadores usados en aplicaciones termoluminiscentes tienen de 11 a 13 dinodos y ventanas de aproximadamente 52 mm de diámetro. La sensibilidad típica del cátodo es de aproximadamente $70-100 \mu\text{A/lumen}$ y del ánodo es aproximadamente 2000 A/lumen . Consecuentemente ganancias de 10^6-10^7 son obtenidas. En el más usual modo de operación, la corriente del ánodo es simplemente amplificada y leída en un

picómetro de donde la salida puede ser mostrada en una gráfica o transformada por convertidor analógico-digital para ser archivada en la memoria de una computadora para análisis de datos.

La parte esencial del tubo fotomultiplicador es el material de construcción del fotocátodo. El fotocátodo es codificado por una "S" y un número, o por la indicación de los componentes de construcción. Los fotocátodos más comunes son los bialcalinos; como ejemplo se tiene KCs, RbCs o KNaSb. Estos materiales tienen una alta ganancia pero su principal inconveniente es su respuesta espectral. La figura 6.9 ilustra la respuesta espectral típica para una variedad de materiales. El diagrama muestra la sensibilidad absoluta (S) contra longitud de onda (λ). Frecuentemente es más conveniente el calcular la eficiencia cuántica mediante la siguiente fórmula:

$$QE = 123.95 S/\lambda.$$

Se puede ver que los bialcalinos tienen una respuesta aguda a los 420 nm aproximadamente. Esto corresponde convenientemente a una máxima emisión de longitud de onda de muchos fósforos termoluminiscentes pero limita el uso del tubo fotomultiplicador en la detección de regiones con corta longitud de onda. Para una respuesta más amplia, el intervalorango del fotocátodo S20 se requiere, particularmente si son monitoreadas emisiones termoluminiscentes en espectro rojo. Nótese que esta amplia respuesta es obtenida con la consecuente pérdida en sensibilidad.

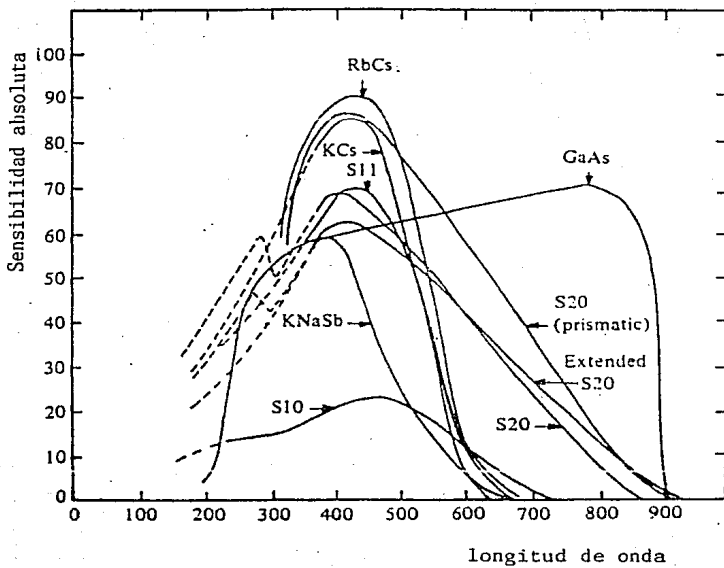


Figura 6.9. Respuesta espectral de los tubos fotomultiplicadores comunes expresada en sensibilidad absoluta.

El fotocátodo CaAs es requerido si se desea la mejor característica espectral, aunque éste no sea muy conveniente para intensidades muy débiles ya que presenta una sensibilidad muy baja comparado con otros bialcalinos. Téngase en cuenta que las curvas mostradas en la figura son representativas de los tubos en particular; si se desea una respuesta más concisa deberá realizarse una curva individual para cada tubo fotomultiplicador.

Los materiales del fotocátodo tienen la tendencia de producir electrones mediante la emisión termiónica y aun estando a oscuras se obtiene una corriente de aproximadamente 10^{-9} A. Esta corriente oscura o ruido se puede reducir sin la necesidad de pérdida de sensibilidad mediante el enfriamiento del tubo durante su uso.

Un problema final de los tubos fotomultiplicadores es su envejecimiento, donde la sensibilidad progresivamente decrece tanto con el uso, como con la edad. Una manera segura de cerciorarse de este envejecimiento es checando regularmente la sensibilidad con una fuente de luz calibrada o con una muestra radiactiva (^{14}C), también es posible usar un cristal como NaI:Tl. Notese que cada fuente de luz emite a diferente longitud de onda y por lo tanto sería conveniente el usar varias fuentes de luz en intervalos tanto intermedios como en los extremos.

Conteo por Fotones:

La sensibilidad en el modo normal de operación de corriente

directa descrito arriba no es lo suficientemente alto para varias aplicaciones en termoluminiscencia (arqueología por ejemplo) donde se miden bajas intensidades de luz. En estas circunstancias el conteo por fotones es más recomendable. El conteo de fotones involucra el procesamiento digital de la corriente en pulsos del ánodo que corresponden a interacciones individuales de los fotones en el cátodo. Cada fotón incidente en el cátodo produce un pulso de electrones en el ánodo. Cada pulso dura varios nanosegundos y puede haber más de 10^6 arribando por segundo. Los pulsos son de diferentes amplitudes y la línea de base no es constante con el tiempo. Como se ilustra en la figura 6.10, la señal alimenta un amplificador de pulsos con una ganancia de aproximadamente 10^3 . Las variaciones de la línea de base pueden ser eliminadas mediante el establecimiento de una frecuencia umbral para la señal de entrada del amplificador. Después de la amplificación, los pulsos aleatorios entran a un discriminador el cual sólo permite el paso de aquellos pulsos que están por encima de un voltaje umbral preestablecido. Después estos pulsos son transformados en pulsos de altura uniforme. Los pulsos pueden ser contados en intervalos de tiempo establecidos. El total de cuentas durante un cierto periodo es una medida del número de fotones que interactúan con el cátodo. Un convertidor digital-analógico puede ser usado para convertir la señal y usar gráficas representativas del fenómeno en cuestión, mientras que la salida digital proveniente del contador puede ser procesada por una

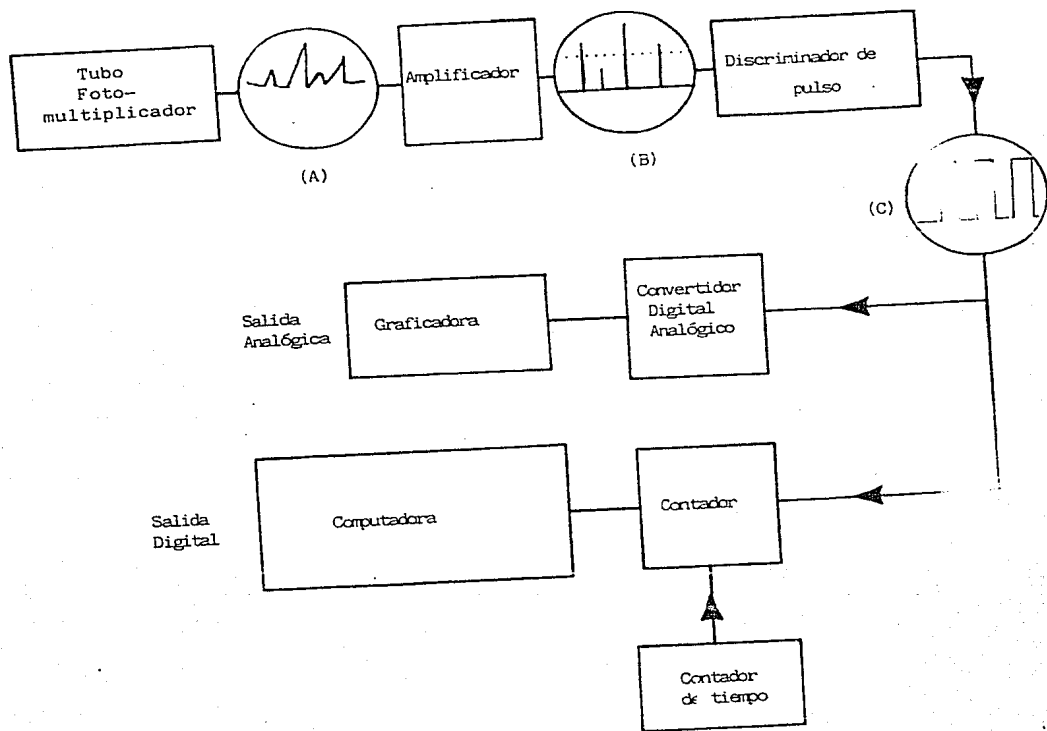


Figura 6.10. Representación esquemática de un sistema de conteo por fotones que muestra los pulsos en diferentes partes del proceso de amplificación y discriminación, (A,B,C) (80).

computadora para su análisis.

Este método aun no se introduce en los modelos comerciales, pero en laboratorios particulares ha sido de gran beneficio para medidas de bajas intensidades de luz. Este método es muy provechoso por su baja razón de señal-ruido que lo hace muy sensitivo y técnicamente muy atractivo(80).

CAPITULO 7

EXPERIMENTACION

7.1 Objetivo

El objetivo de este capítulo es el de visualizar la forma de trabajo con la que se operan los dosímetros termoluminiscentes. La mayoría de los dosímetros termoluminiscentes tienen una fuerte dependencia angular; esto es que dependiendo del ángulo de incidencia de la radiación, la respuesta del dosímetro varía. La dependencia se ve más acentuada para las radiaciones beta y por lo tanto esta cobra importancia en las técnicas de dosimetría personal. Un estudio de la caracterización de las capacidades y limitaciones de los dosímetros TLD-700 para la medida de la dosis absorbida de los rayos beta es de vital importancia con lo que se pueden expandir sus propiedades más importantes.

Los factores geométricos que pueden influenciar la respuesta de un dosímetro son: el ángulo de incidencia de la radiación, el área y espesor de el dosímetro y el espesor del atenuador o filtro. Como se describió en el capítulo 4, los otros factores que pueden afectar la respuesta de un dosímetro incluyen el número atómico de material, la presencia de un fantasma, la sensibilidad del dosímetro y el máximo alcance de los rayos beta en este.

La figura 7.1 muestra la exposición de un dosímetro con un

atenuador arbitrario de espesor T paralelo a este. La radiación beta penetra el dosímetro con un ángulo de incidencia θ . El espesor efectivo del atenuador puede ser expresado como:

$$t_{ef} = T/\cos\theta, \quad 0 \leq \theta \leq 90 \quad (7.1)$$

Para rayos beta el volumen del dosímetro donde la energía es depositada (V_E) a un ángulo dado de θ grados en general puede ser expresado como :

$$V_E = AR\cos\theta \quad (7.2)$$

donde A es el área del dosímetro y R es el alcance de las partículas beta. Existen dos casos de interés; el primero es cuando el alcance de las partículas beta es mayor o igual al espesor efectivo del dosímetro. En este caso la energía de las partículas beta se ve depositada en el volumen del dosímetro enteramente ($R \geq t/\cos\theta$); esto es :

$$V_E = At \quad (7.3)$$

donde t es el espesor actual del dosímetro.

En el segundo caso es cuando el alcance de las partículas beta es menor que el espesor efectivo del dosímetro ($R < t/\cos\theta$), entonces el volumen del dosímetro donde se deposita la energía de las partículas beta es aproximada por la ecuación (7.2): $V_E = AR\cos\theta$. Es claro que esto es una aproximación ya que no

considera los efectos de borde.

De los dos casos anteriores se puede concluir que entre mayor sea el alcance de los rayos beta o mas delgado el dosímetro sea, mas grande sera el angulo sobre el cual la energía de las partículas beta puede ser depositada sobre todo el volumen del dosímetro; por lo tanto la respuesta de este sera menos dependiente del angulo de incidencia de la radiación beta.

7.2. Procedimiento

La fuente de rayos beta usada para el desarrollo de este experimento es del tipo puntual y esta calibrada para obtener directamente la dosis sobre tejido humano. Esta fuente es parte de un juego de fuentes standard secundarias calibradas por Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig, Republica Federal de Alemania. La fuente de radiación usada es Sr-90 con una actividad nominal de 74 MBq el 13 de Febrero de 1986. Su vida media es : $T_{1/2} = 28.5 \pm 0.8$ años. La distancia para la cual esta fuente esta calibrada es de 30 cm con una rapidez de dosis de $D'_0 = 1.961 \mu\text{Gy}/\text{seg.}$ ($0.1961 \text{ mrad}/\text{seg.}$) en tejido humano a una profundidad cero ($d=0$). La dosis en aire es de $1.767 \mu\text{Gy}/\text{seg.}$ ($0.176 \text{ mrad}/\text{seg.}$) a presión y temperatura standard. En caso de tenerse un material diferente a aire o tejido humano ($\rho = 1 \text{ g}/\text{cm}^3$) se debera multiplicar por la razon de poder de frenado en el material y del tejido humano (o aire en su caso particular). Hago notar el hecho que entre la fuente y los detectores se

impone una filmina especial que corrige y mantiene constante la dosis de radiación sobre una area de 10cm^2 a 30cm^2 de separación⁽⁸¹⁾. Con el fin de obtener una dosis constante sobre todos los angulos a medir se procedió a irradiar por un tiempo equivalente a un (0.1) rad. La siguiente formula se uso para calcular dicho tiempo:

$$t = D/D' \quad (7.4)$$

donde D es la dosis establecida y D' es la rapidez de dosis corregida por todos aquellos factores ambientales; esto es:

$$D' = D_0' T K^{\text{cero}} K^{\text{aire}} K^{\text{hum}} \quad (7.5)$$

donde D_0' es la rapidez de dosis a la que fue calibrada la fuente; T es el factor de corrección de profundidad en el tejido; K^{cero} es el factor de corrección por decaimiento; K^{aire} es el factor de corrección por temperatura y presión y K^{hum} es el factor de corrección por humedad en el aire. Los valores encontrados son los siguientes:

$T = 1.002$; esto se debe a la retrodispersión de electrones.

$K^{\text{cero}} = 0.9902$; decaimiento en 210 días.

$K^{\text{aire}} = 0.99$; las condiciones son casi las mismas que a las que se llevo a cabo la calibración.

$K^{\text{hum}} = 1$; 42% de humedad relativa.

Mediante la aplicación de estos datos obtenemos un tiempo de $t = 514$ seg. equivalentes a 0.1 rad.

El soporte de los dosímetros es un fantasma equivalente al cuerpo humano; el material usado fue baquelita con un espesor de 5 cm. En ella se colocaron 5 dosímetros alineados de tal forma que queden paralelos al campo de radiación y a la misma distancia de separación con la fuente de irradiación.

Los ángulos que se midieron fueron de 0° , 10° , 20° , 30° , 40° , 60° , 80° , y 90° . La figura 7.2 muestra la respuesta de el dosímetro con respecto a el angulo de incidencia.

El proceso de lectura de los dosímetros esta constituido por un lector modelo 2000B, un TL Picoprocesador modelo 2080, estos son fabricados por Harshaw, una computadora IBM AT y las partes perifericas como son el tanque de nitrogeno, lector de temperatura ambiental, etc. La señal recibida por el fotomultiplicador es transportada al picoprocesador de donde esta es convertida en señal digital. Posteriormente esta curva de luz es llevada a la computadora en donde se procede a su analisis. La computadora memoriza los datos de la curva de luz, la curva en sí, así como los parametros de lectura con la que esta se realizo. Como un resultado notable el programa de computación tiene la capacidad de graficar la curva de luz, y integrar la región de interes ya sea automaticamente o manualmente. Ejemplos de curvas de luz obtenidas por este dispositivo se dan en las grafica 7.3.

Los resultados que se muestran en la figura 7.2 estan de acuerdo con las cualidades cualitativas de la teoría geométrica

establecida anteriormente. En general podemos concluir que entre mas mas baja la energía de las partículas beta sean, mas dependiente será la respuesta del dosímetro con respecto al ángulo de incidencia de la radiación, y entre mas delgado sea el dosímetro mas independiente será la respuesta del dosímetro al ángulo de incidencia. Un análisis mas minucioso de la dependencia angular podría ser llevada a cabo mediante el estudio de esta a rayos beta monoenergéticos, y sucesivamente a un espectro continuo.

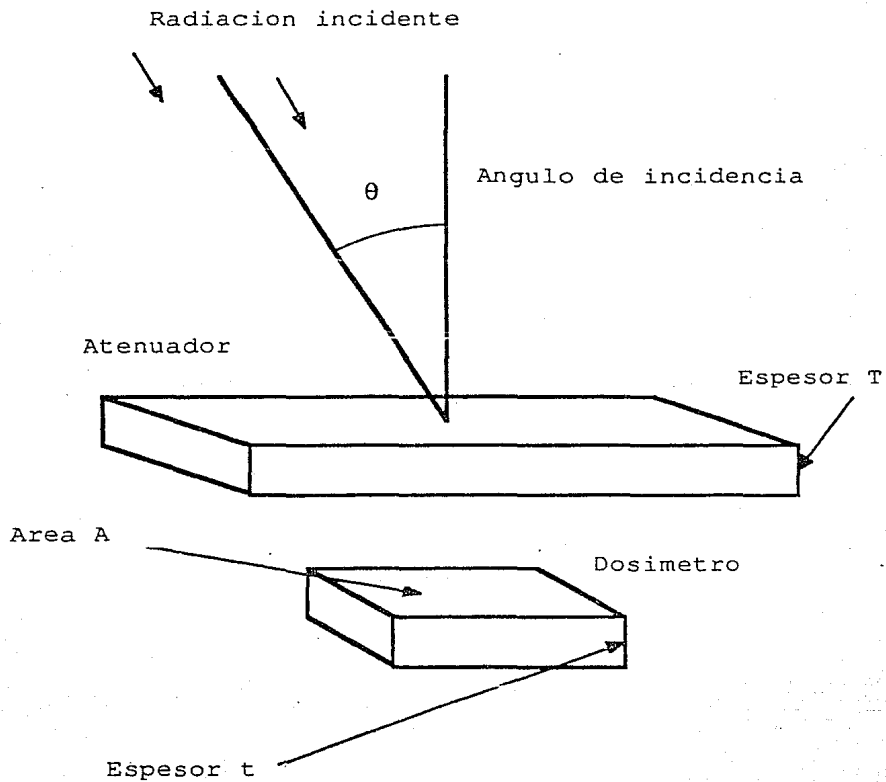


Figura 7.1. Exposición geométrica de un dosímetro.

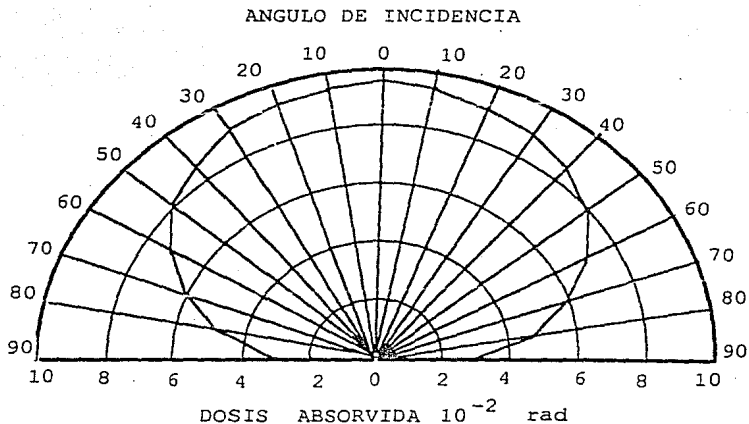


Figura 7.2. Respuesta angular de los dosímetros termoluminiscentes TLD-700. El espesor másico fue el correspondiente a la capa delgada de piel humana (1gm/cm^3). La dosis absorbida fue de 0.1 rad. La fuente usada fue Sr-90/Y-90.

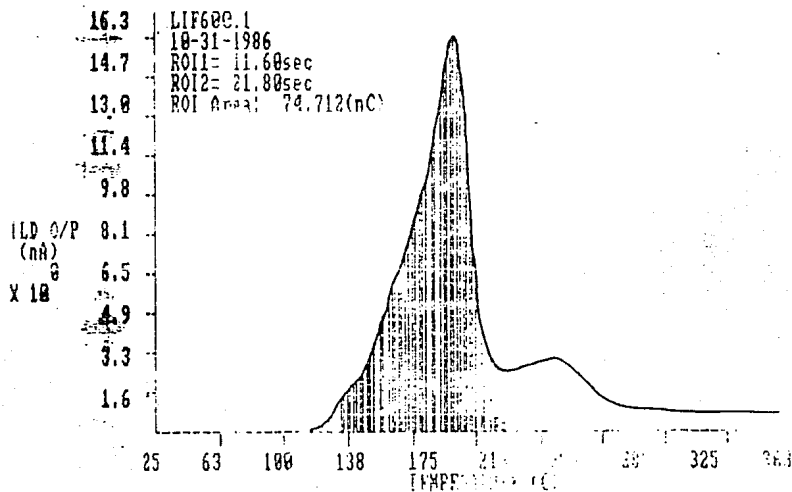
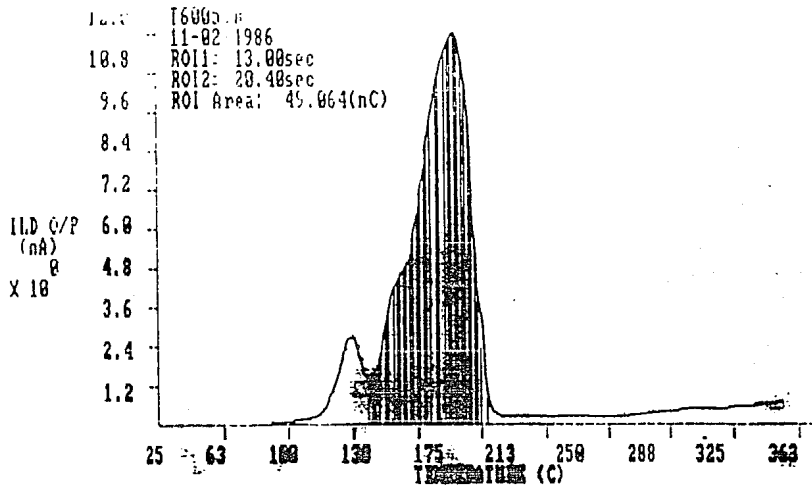


Figura 7.3. Curvas de luz obtenidas mediante el uso del sistema lector-picoprocesador-computadora-analisis.

CAPITULO 8

CONCLUSIONES

La presente obra unifica las partes aisladas del fenómeno termoluminiscentes con una visión de presentar el tópico como un solo objeto de estudio. La utilidad de esta obra es la de poder establecer aquellos estudios aislados del fenómeno termoluminiscente con la dosimetría. Con lo anteriormente visto vemos que sería ideal obtener un dosímetro con las siguientes propiedades; que tuviese una sensibilidad adecuada sobre un intervalo anticipado de 0 a 800 rads; que tuviese una exactitud de un 30% para aplicaciones dosimétricas y 20% para aplicaciones médicas; que fuese estable, reproducible e independiente a la energía de la radiación. Se desearía también que tuviese una respuesta lineal a la dosis absorbida con independencia a la transferencia lineal de energía (LET) así como a la rapidez de dosis. Como se vio en la parte experimental de esta obra, se desearía que la respuesta del dosímetro fuese independiente al ángulo de incidencia de la radiación. En ocasiones se desea que el dosímetro no responda a ciertos tipos de radiaciones con el fin de discriminar y obtener información acerca de la calidad de la radiación. Si se toman en cuenta los factores ambientales, se desearía que estos fuesen estables con respecto a un intervalo amplio de temperaturas, un bajo desvanecimiento al ser expuesto a luz solar y resistente a los agentes químicos. Por último se

desearía que fuese de fácil indentificación así como de procesamiento y lectura.

No todos los requerimientos arriba mencionados pueden satisfacerse, pero un balance puede ser obtenido mediante el profundo estudio de las diferentes áreas de aplicación del fenómeno termoluminiscente, sin descuidar la parte teórica que representa el pilar fundamental de toda aplicación. La presente obra da la pauta para el comienzo de una serie de trabajos de investigación en las diferentes áreas del fenómeno termoluminiscente con el objetivo de obtener las cualidades arriba mencionadas.

REFERENCIAS

- 1a) J.T. Randall y M.H.F. Wilkins, "Phosphorescence and electron traps I. The study of trap distributions", Proc. Roy. Soc. Lond., 184, 366, (1945).
- 1b) J.T. Randall y M.H.F. Wilkins, "Phosphorescence and electron traps II. The interpretation of long-period phosphorescence", Proc. Roy. Soc. Lond., 184, 390, (1945).
- 2) S. Gaseorowicz, Quantum Physics, Ed. John Wiley & Sons, New York, 1974, p.84.
- 3) J.P. McKelvey, Física del Estado Solido, Ed. Limusa, México, 1980, p. 172.
- 4) Ibidem. p. 418.
- 5) N.F. Mott, "Electrons in Glass", Contemp. Phys., 18, 225, (1977).
- 6) E.I. Adirovitch, "LA FORMULE DE BECQUEREL ET LA LOI ELEMENTAIRE DU DECLIN DE LA LUMINESCENCE DES PHOSPHORES CRISTALLINS", J. Phys. Rad., 17, 705, (1956).
- 7) A. Rose, Concepts in Photoconductivity and Allied Problems, Ed. Interscience, New York, 1963.
- 8) Ibidem.
- 9) J.C. Kao y W. Hwang, Electrical Transport in Solids, Ed. Pergamon Press, Oxford, 1981.
- 10) W. Shockley y W.T. Read, "Statistics of the Recombination of Holes and Electrons", Phys. Rev., 87, 835, (1952).
- 11) P.D. Johnson y F.E. Williams, "Energy Levels and Rate Processes in the Thallium Activated Potassium Chloride Phosphor", J. Chem. Phys., 20, 124, (1952).
- 12) G.H. Dieke y H.M. Crosswhite, "The Spectra of the Doubly and Triply Ionized Rare Earths", Appl. Optics, 2, 675, (1963).
- 13) R. Visocekas, T. Ceva, C. Marti, F. Lefauchaux y M.C. Robert,

"Tunneling Processes in Afterglow of Calcite", Phys. Stat. Sol. 35, 315, (1976).

14) W. van Roosbroeck y H.C. Casey, "Transport in Relaxation Semiconductors", Phys. Rev. B, 2, 2154, (1972).

15) D.H. Auston, C.V. Shank y P. LeFur, "Picosecond Optical Measurements of Band-to-Band Auger recombination of High-Density Plasmas in Germanium", Phys. Rev. Lett., 35, 1022, (1975).

16) G.F.J. Garlick y M.H.F. Wilkins, "Short Period Phosphorescence and Electron Traps", Proc. Roy. Soc. Lond., 184, 408, (1945).

17) G.F.J. Garlick y A.F. Gibson, "The Electron Trap Mechanism of Luminescence in Sulphide and Silicate Phosphors", Proc. Phys. Soc. (Lond.), 60, 574, (1948).

18) P.D. Townsend, K. Ahmed, P.J. Chandler, S.W.S. McKeever y H.J. Whitlow, "Measurements of the Emission Spectra of LiF During Thermoluminescence", Radiat. Eff., 72, 245, (1983).

19) P.W. Levy, P.L. Mattern y K. Lengweiler, "Three Dimensional Thermoluminescent Analysis of Minerals", Mod. Geol., 2, 295, (1971).

20) P.L. Mattern, K. Lengweiler y P.W. Levy, "Apparatus for the Simultaneous Determination of Thermoluminescent Intensity and Spectral Distribution", Mod. Geol., 2, 293, (1971).

21) R. Chen, S.W.S. McKeever, y S.A. Durrani, "Solution of the kinetic equations governing trap filling. Consequences concerning dose dependence and dose-rate effects", Phys. Rev. B., 24, 4931, (1981).

22) R.R. Hearing y N.A. Adams, "Theory and Application of Thermally Stimulated Currents in Photoconductors", Phys. Rev., 117, 451, (1960).

23) A. Halperin y A.A. Braner, "Evaluation of Thermal Activation Energies from Glow Curves", Phys. Rev., 117, 408, (1960).

24) S. Glasstone, K.J. Laidler y H. Eyring, The theory of rate processes, Ed. McGraw-Hill, New York, 1941.

25) D.W. Cooke y J.F. Rhodes, "Thermoluminescence studies of LiF(TLD-100) in the temperature interval 10-300 K", J. Appl. Phys., 52, 3606, (1981).

26) M. Schon. "Zum Leuchtmechanismus der Kristallphosphore", Z.

Physik, 119, 463, (1942).

27) P. Braunlich y A. Scharmann, "Aproximate Solution of Schon's Balance Equations for Thermoluminescence and Thermally Stimulated Conductivity for Inorganic Photoconducting Crystals", Phys. Stat. Sol., 18, 307, (1966).

28) P. Kelly y P. Braunlich, "I. Phenomenological Theory of Thermoluminescence", Phys. Rev. B, 1, 1587, (1970).

29) R. Chen y Y. Kirsh, Analysis of Thermally Stimulated Processes, Ed. Pergamon Press, Oxford, 1981.

30) V. Maxia, "Nonequilibrium Thermodynamics of the Thermoluminescence Process", Phys. Rev. B, 17, 3262, (1978).

31) F. Aramu, V. Maxia, G. Spano y C. Cortese, "Kinetics of the Carrier Storage in Thermoluminescent Phosphors", J. Lumi., 11, 197, (1975).

32) N. Suntharalingam y J.R. Cameron, "Thermoluminescent Response of Lithium Fluoride to radiations with Different LET", Phys. Med. Biol., 14, 397, (1969).

33) D. W. Zimmerman y J.R. Cameron, Thermoluminescence of Geological Materials, por D.J. McDougall, Ed. Acad. Press, Lond., p. 485, (1968).

34) A.R. Lakshmanan, R.C. Bhatt y S.J. Supe, "Mechanism of nonlinearity in the response characteristics of thermoluminescent dosimeters", J. Phys. D: Appl. Phys., 14, 1683, (1981).

35) J.R. Cameron, N. Suntharalingam, y G.N. Kenney, Thermoluminescence Dosimetry, Ed. Univ. Wisconsin Press, Madison, (1968).

36) Z. Spurný, "Some New Materials for TLD", Nucl. Instrum. Meth., 175, 71, (1980).

37) A.S. Pradhan y C. Bhatt, "Metal Filters for Compensation of Photon Energy Dependence of the Response of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ -Teflon TLD Discs", Nucl. Instrum. Meth., 166, 497, (1979).

38) U. Greitz y B.I. Rudén, "Calibration of LiF teflon Rods for Internal LiF Beta-ray Dosimetry", Phys. Med. Biol., 17, 193, (1972).

39) F.K. Chan y T.E. Burlin, "The Energy-size Dependence of the Response of Thermoluminescent Dosimeters to Photon Irradiation", Health Phys., 18, 325, (1970).

- 40) K. O'Brien, "Monte Carlo Calculations of the Energy Response of Lithium Dosimeters to High Energy Electrons", Phys. Med. Biol., 22, 836, (1977).
- 41) B. Mukherjee, "Light Conversion Efficiencies of ^7LiF thermoluminescent Dosimeters (TLD-700) for Photons with a Non-Monoenergetic Energy Distribution", Nucl. Instrum. Meth., 190, 207, (1981).
- 42) B. Jahnert, "The Response of TLD-700 Thermoluminescent Dosimeters to Protons and Alpha-Particles", Health Phys., 23, 112, (1972).
- 43) L. Larsson y R. Katz, "Supralinearity of Thermoluminescent Dosimeters", Nucl. Instrum. Meth., 138, 631, (1976).
- 44) A. Charlesby, "Field Enhanced Luminescence of Irradiated Organics due to Electron Tunnelling", Radiat. Phys. Chem., 17, 399, (1981).
- 45) A.A. Braner y M. Israeli, "Effects of Illumination on Thermoluminescence of Alkali Halides", Phys. Rev., 132, 2501, (1963).
- 46) J.D. Brodribb, D. O'Colmain y D.M. Hughes, "The Theory of Photon-Stimulated Current Spectroscopy", J. Phys. D: Appl. Phys., 8, 856, (1975).
- 47) B. Bosacchi, R. Fieschi y P. Scaramelli, "Photostimulated Thermoluminescent in Potassium Chloride Single Crystals", Phys. Rev., 138, (1760).
- 48) A.R. Lakshamanan, B. Chandra y R.C. Bhatt, "On the Role of Z Centres and Competing Nonluminescent Centres in the Sensitization and Supralinearity Mechanism of LiF TLD-100 Phosphor", J. Appl. D: Appl Phys., 15, 1501, (1982).
- 49) B. Burgkhardt, R. Herrera y E. Piesch, "The Effect of Post-Irradiation Annealing on the Fading Characteristic of Different Thermoluminescent Materials Part I- Experimental Results", Nucl. Instrum. Meth., 155, 293, (1978).
- 50) B. Burgkhardt y E. Piesch, "The Effect of Post-Irradiation Annealing on the Fading Characteristic of Different Thermoluminescent Materials Part II- Optimal Treatment and Recommendations", Nucl. Instrum. Meth., 155, 199, (1978).
- 51) E.W. Mason, A.F. McKinlay y I. Clark, "Cooling Rate Effects in Thermoluminescence Dosimetry Grade Lithium Fluoride.

- Implications for Practical Dosimetry", *Phys. Med. Biol.*, 21, 60, (1976).
- 52) E. Piesch, en Applied Thermoluminescent Dosimetry, por M. Oberhofer y A. Scharmann, Ed. Adam Hilger, Bristol, Great Britain, 1981.
- 53) J.A. Douglas, en Applied Thermoluminescent Dosimetry, por M. Oberhofer y A. Scharmann, Ed. Adam Hilger, Bristol, Great Britain, 1981.
- 54) G. Portal, en Applied Thermoluminescent Dosimetry, por M. Oberhofer y A. Scharmann, Ed. Adam Hilger, Bristol, Great Britain, 1981. p.97.
- 55) S.W.S. McKeever, Thermoluminescence of Solids, Ed. Cambridge University Press, London, 1985. p. 219.
- 56) H. Cember, Introduction to Health Physics, Ed. Pargamon Press, New York, 1985, p 177.
- 57) D.W. Zimmerman, "Relative Thermoluminescence Effects of Alpha and Beta-Radiation", *Rad. Effects*, 14, 81, (1972).
- 58) A.S. Pradhan y R.C. Bhatt, "Graphite-mixed CaSO_4 :Dy Teflon Discs for Beta Dosimetry", *Phys. Med. Biol.*, 22, 873, (1977).
- 59) D. Lowe, J.R.A. Lakey y A.V. Yorke, "A New Thin Dosimeter", *Health Phys.*, 37, 417, (1979).
- 60) P. Christensen y B. Majborn, "Boron Diffused Thermoluminescent Surface in LiF TLDs for Skin Dose Assesments", *Nucl. Instrum. Meth.*, 175, 74, (1975).
- 61) M. Ikeya, M. Ishibashi y N. Itoh, "Thermoluminescent Response of the Mixture of CaSO_4 and Li_2SO_4 to Thermal Neutron and γ -Ray Fields", *Health Phys.*, 21, 429, (1971).
- 62) A.S. Pradhan, R.C.Bhatt, A.R. Lakshanan, B. Chandra y S.S. Shinde, "A Thermoluminescent Fast-Neutron Dosimeter Based on Pellets of CaSO_4 :Dy Mixed with Sulphur", *Phys. Med. Biol.*, 23, 723, (1978).
- 63) J.A. Douglas y M. Marshall, "The Responses of some Tl Albedo Neutron Dosimeters", 35, 315, (1978).
- 64) E. Piesch, en Applied Thermoluminescent Dosimetry por M. Oberhofer y A. Scharmann, Ed. Adam Hilger, Great Britain, 1981.

65) E. Thomaz, V. D'Alotto, C.E. Nollmann y J.J. Kunst, "Determination of Absorbed Doses in a Computerized Tomography Scanner", Nucl. Instrum. Meth., 175, 196, (1980).

66) H.H. Eisenlohr y S. Jayaraman, "IAEA-WHO Cobalt-60 Teletherapy Dosimetry Service Using Mailed LiF Dosimeters. A Survey of Results Obtained during 1970-1975", Phys. Med. Biol., 22, 18, (1977).

67) A.S. Pradhan y R.C. Bhatt, "Photo-Stimulated Luminescence and Thermoluminescence in $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ", Phys. Stat. Sol., 68, 405, (1981).

68) P.C. Shrimpton, B.F. Wall y E.S. Fisher, "The Tissue-Equivalence of the Alderson Rando Anthropomorphic Phantom for X-rays Diagnostic Qualities", Phys. Med. Biol., 26, 133, (1981).

69) A.F. McKinlay, Thermoluminescent Dosimetry, Ed. Adam Hilger, Bristol, 1981.

70) G. Marinello, C. Barret, y J.P. Le Bourgeois, "Lithium Borate Discs for Skin Dose Measurements: Application to Total Body Superficial Electron Beam Therapy", Nucl. Instrum. Meth., 175, 198, (1975).

71) J.T. Brand y G.R. Kerr, "The Results of Treatment of Carcinoma of the Uterine Cervix Using a Linear Vaginal Source and 4 MV X Rays", Brit. Journ. Radiol., 55, 352, (1982).

72) Ibidem.

73) B.F. Wall, D.A.C. Green y R. Veerappan, "The Radiation Dose to Patients from EMI Brain and Body Scanners", Brit. Journ. Radiol., 52, 189, (1979).

74) J.W. McKlveen, "X-Ray Exposure to Dental Patients", Health, Phys., 39, 211, (1980).

75) H.W. Julius, en Applied Thermoluminescence Dosimetry, por M. Oberhofer y A. Scharmann, Ed. Adam Hilger, Britain, 1981.

76) M. Oberhofer, en Applied Thermoluminescence Dosimetry, por M. Oberhofer y A. Scharmann, Ed. Adam Hilger, Britain, 1981.

77) Yasuna et al., U.S. Patent 4,204,119. May 20, 1980.

78) K.E. Duftschnid, "The Automated/Computerized TLD-Personnel Monitoring System in Austria", Nucl. Instrum. Meth., 175, 162, 1980.

79) J. Gasiot, P. Braunlich y J.P. Fillard, "Laser Heating Thermoluminescence Dosimetry", J. Appl. Phys., 53, 5200, 1982.

80) H.W. Julius, en "Applied Thermoluminescence Dosimetry" por M. Oberhofer y A. Scharmann, Ed. Adam Hilger, Bristol, Britain 1981.

81) "Beta Secondary Standard BSS", Instructions for Operation; Publicado por : Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, Braunschweig. 1986.

82) Model 2080 TL Picoprocessor; Operators Manual, Harshaw, 1986.