



00550

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE
MEXICO

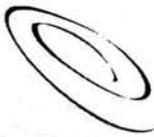
PROGRAMA DE MAESTRIA Y DOCTORADO EN CIENCIAS QUIMICAS

EVALUACION DE LA DOSIMETRIA TERMOLUMINISCENTE DEL CRISTAL $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$
EXPUESTO A RADIACIÓN GAMMA A BAJAS TEMPERATURAS

TESIS
PARA OPTAR POR EL GRADO DE
MAESTRO EN CIENCIAS

PRESENTA

ANTONIO HERNANDEZ MEDINA



Ciencias
Químicas

TUTOR: Dra. ALICIA NEGRON MENDOZA
2004



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



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 esta 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.

ESTA TESIS NO SALE
DE LA BIBLIOTECA

Agradecimientos

Agradezco enormemente a mi directora de tesis Dra. Alicia Negrón Mendoza por su tiempo y apoyo dedicado para la elaboración de esta tesis.

Agradezco a los integrantes del comité sinodal:

Dr. Sergio Ramos Bernal
M. en C. Cristina Flores Jiménez
M. en C. Juan Lartigue Gordillo
Dr. Manuel Navarrete Tejero
Dr. Emilio Bucio Carillo

Por su revisión y valiosos comentarios de este trabajo.

Al Dr. Epifanio Cruz Zaragoza, por su tiempo y apoyo en la enseñanza del uso del Gammacell, Gamma Beam y lector TL, así como, sus comentarios de los resultados experimentales.

A Los técnicos:

Francisco Flores García
José Luis Reza Monroy

Por brindarme asesoría en la utilización de los quipos y material utilizado en los experimentos de esta tesis.

Agradezco al instituto de Ciencias Nucleares de la UNAM por el uso de sus instalaciones.

Autorizo a la Dirección General de Bibliotecas de la UNAM a difundir en formato electrónico e impreso el contenido de mi trabajo recepcional.

NOMBRE: Antonio Hernández Medina

FECHA: 2-06-2004

FIRMA: Antonio

A mis padres:

Jerónimo Hernández González

Y

Margarita Medina Martínez

Por su comprensión, apoyo y educación que me brindaron.

Y en general a mis familiares.

A la memoria de Amada Martínez Rojas y Juan Manuel Hernández Medina

Agradezco su apoyo, paciencia y fraternalismo a mis amigos quienes admiro:

Agueda Pérez López
Horacio Gutiérrez Arredondo
Zonia de León
Marjolaine Toussaint
Alejandro Ortiz Morales
Maria Dolores Hernández Torres
Tania Bravo Alarcon
Marina Bethel Bravo Alarcon
Amanda Bravo Alarcon
Jarquín Zarate Fausto
Marx Lennin Zapata Yañez
Gabriela Hurtado Hábiles
Azuzena Suarez
Maricela Garcia
Paola Siqueros
Esthela Hernández
Hugo Navarro
Omar Velásquez
Marcia Luna
Yunuén Juárez
Yahira del Rocío Tengan Banda
Holdair Paulin
Roy Rivera

La ciencia es la llave del universo real

ÍNDICE

PAG.

Resumen	3
Introducción	4

CAPÍTULO I

Fundamentos teóricos

1.1 Interacción de la radiación en un sólido	
1.1.1 Radiación ionizante.	5
1.1.2 Radiación electromagnética de alta energía.	7
1.2 Defectos Cristalográficos	
1.2.1 Clasificación de los defectos cristalográficos.	9
1.2.2 Vacancias e intersticiales.	10
1.2.3 Impurezas y agregación bipolar.	11
1.3 Daños por radiación en halogenuros alcalinos	
1.3.1 Excitones.	13
1.3.2 Defectos inducidos por radiación ionizante.	15
1.4 Dosimetría Termoluminiscente	
1.4.1 Luminiscencia.	18
1.4.2 Termoluminiscencia.	21
1.4.3 Modelos de Randall y Wilkins, Garlick y Gibson.	22
1.4.4 Dosimetría de radiación.	26

CAPÍTULO II

Procedimiento experimental

2. 1 Descripción de las muestras.	31
2.2 Tratamiento térmico.	31
2.3 Técnica de termoluminiscencia.	32
2.4 Fuente de radiación.	32
2.5 Calibración de la fuente de irradiación.	33
2.6 Irradiación de las muestras.	34

CAPÍTULO III

Resultados y discusión

3.1 Curvas de brillo a temperatura de irradiación de 293 K.	36
3.2 Curvas de brillo a temperaturas de irradiación de 77 K.	38
3.3 Comparación de las curvas de brillo de las temperaturas de irradiación de 293 y 77 K.	40
3.4 Respuesta TL en función de la dosis, a temperatura de irradiación de 293 y 77 K. .	43

Capitulo IV

Conclusiones.	45
Bibliografía.	47
Índice de figuras.	49

Resumen

El objetivo de este trabajo es conocer si cristales de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ pueden ser utilizados como dosímetros para la radiación a bajas temperaturas. Además determinar si la dosis de radiación absorbida de un material depende de la temperatura a la cual se encuentra cuando se expone a la radiación.

Para llevar a cabo lo anterior se usó el fenómeno de termoluminiscencia, para ello, las muestras se irradiaron a temperaturas de irradiación de 77 y 293 K a diferentes dosis con una fuente de ^{60}Co . El análisis se realizó mediante termoluminiscencia (TL) y se obtuvieron las curvas de brillo correspondientes. Estas curvas se analizaron y se determinó las temperaturas correspondientes al máximo de los picos. Con los resultados de las lecturas TL se trazaron curvas de la respuesta TL en función de la dosis, una para la temperatura de irradiación de 77 K y la otra para la de 293 K. Estas curvas fueron normalizadas.

Las curvas de brillo, así como la curvas de la respuesta TL en función de la dosis obtenidas en este trabajo proporcionan información a cerca de la influencia de la temperatura de irradiación en la respuesta TL y de las propiedades dosimétricas de los cristales de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, y en general el posible efecto de la temperatura de irradiación en otro tipo de material.

Los resultados obtenidos indican que si hay un efecto marcado de la temperatura de irradiación de las muestras; por ello es un factor que se debe considerar al hacer irradiaciones a baja temperatura. La relación respuesta TL - dosis del dosímetro irradiado a 77 K muestra un comportamiento lineal entre 8.03 – 401.5 Gy, que aunado a las otras propiedades dosimétricas que tiene indican que se puede usar como dosímetro a bajas temperaturas.

Introducción

La temperatura a la cual se encuentra un material cuando es expuesto a radiación ionizante, puede influir en la dosis que este absorbe. Debido a que la movilidad de los átomos depende de la temperatura a la cual se encuentran, cuando se generan electrones por interacciones con la radiación las trampas de electrones que pudieran estar presentes en el material, atrapan cierto número de electrones dependiendo de la movilidad que las trampas tengan, este fenómeno influye sobre la intensidad termoluminiscente.

La exposición a la radiación a bajas temperaturas se usa en la esterilización de alimentos congelados, minas, naves espaciales, astronautas en el espacio, en simulaciones de laboratorio de cuerpos extraterrestres, así como muchos otros en los que el material expuesto a la radiación está a una temperatura menor a la del ambiente. El no considerar que la dosis de radiación absorbida de un material dependa de la temperatura a la cual es irradiado puede ocasionar errores en el cálculo de la dosis que realmente absorbe el material, así como, que el tiempo de exposición a la radiación necesario para algún material no sea el adecuado para lograr algún fin, etc.

Para estudiar el efecto de la temperatura a la cual se encuentra un material cuando es irradiado (temperatura de irradiación) sobre la dosis absorbida en este trabajo se emplea el fenómeno de luminiscencia el cual nos ayuda a medir la cantidad de dosis absorbida de algún material termoluminiscente (TL), para los experimentos de este trabajo el material TL a irradiar es el $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ y como fuente de radiación se utilizó una fuente de ^{60}Co .

Los resultados servirán para conocer si la temperatura de irradiación influye sobre la respuesta termoluminiscente, lo cual nos ayudará a determinar la influencia de la temperatura de irradiación en materiales a bajas temperaturas. De acuerdo a los objetivos de este trabajo, se determinará si las muestras utilizadas en los experimentos sirven como dosímetros, y el intervalo de dosis en que funciona a temperaturas de irradiación de 293 K y 77 K de acuerdo a los requerimientos de un dosímetro. Estos resultados servirán para evaluar la dosis de radiación en otro tipo de investigaciones así como experimentos que simulen cuerpos a bajas temperaturas como los del espacio exterior.

CAPÍTULO I

Fundamentos teóricos

1.1 INTERACCIÓN DE LA RADIACIÓN CON UN SÓLIDO

1.1.1 Radiación ionizante

Se llama radiación a toda energía que se propaga en forma de partícula o de onda a través del espacio, si la radiación produce ionización, entonces es radiación ionizante. Los cambios que puede producir la interacción de la radiación ionizante en un sólido algunos autores los llaman daños por radiación en los sólidos y los procesos para llevarlos a cabo, los clasifican en tres clases: colisiones elásticas, procesos electrónicos, y mecanismos fotoquímicos y radiólisis.

Al incidir la radiación sobre la materia tal como un sólido, esta puede depositar toda, una parte o ninguna cantidad energía en el sólido. El mecanismo de transferencia de energía de radiación depende del tipo de radiación. De este punto de vista la radiación ionizante puede ser dividida en tres tipos:

1. Radiación por partículas cargadas (electrones y iones positivos pesados)
2. Radiación por partículas neutras (neutrones)
3. Radiación electromagnética (rayos X, rayos gamma)

Los tipos de procesos de transferencia de energía de radiación por el medio a través del cual interacciona la radiación se presentan en la figura 1.

Cuando la radiación ionizante incide en un sólido se produce en el varios fenómenos físicos tales como la generación de huecos, electrones, estados excitados entre otros, estos fenómenos al ser estudiados nos pueden proporcionar información de las propiedades físicas y de la estructura del sólido, la cual puede ser útiles en investigación y aplicaciones tecnológicas. Para obtener información de los cambios que ocurren cuando la radiación ionizante interacciona en un sólido se emplean técnicas experimentales tal como la termoluminiscente.

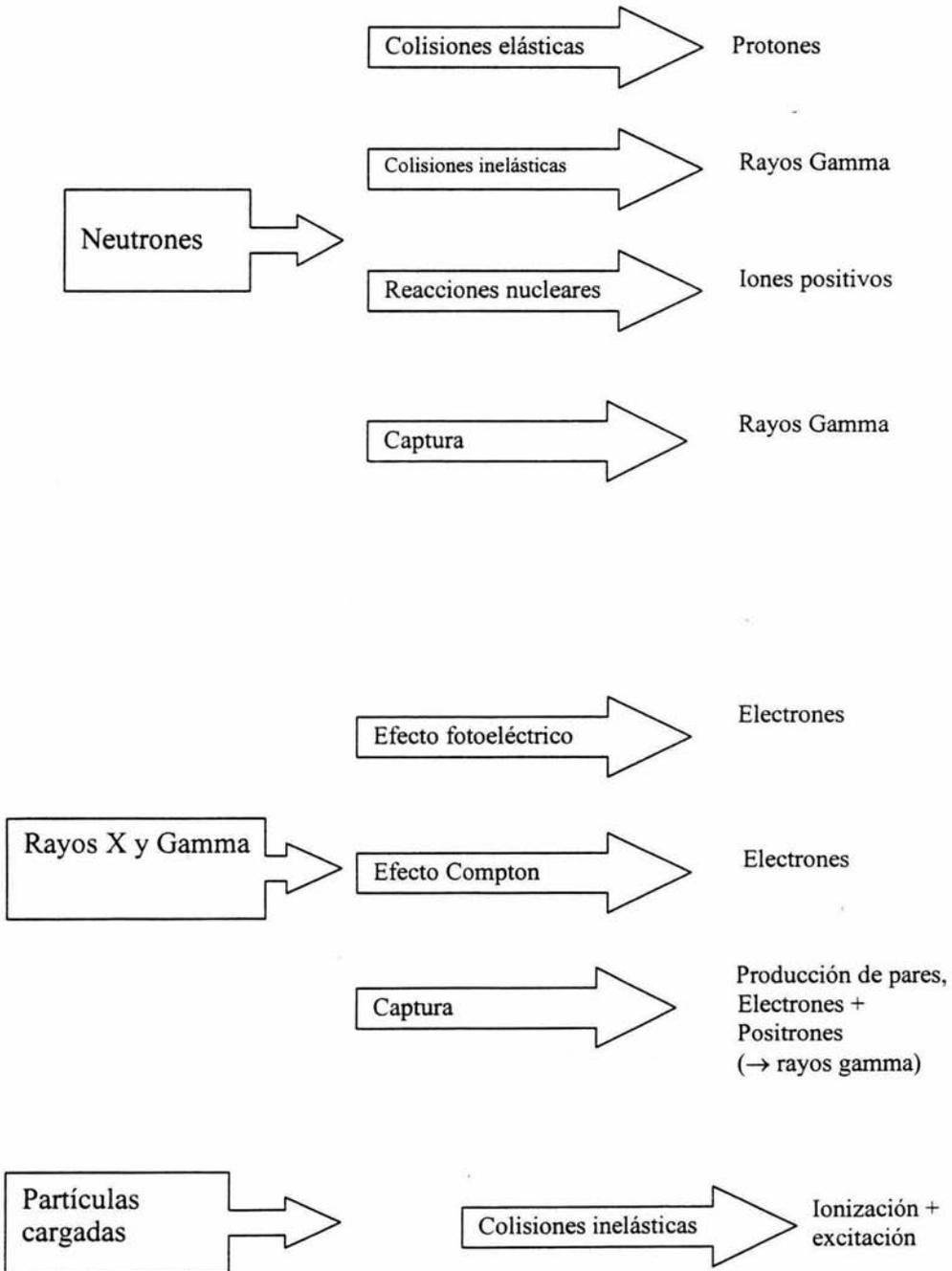
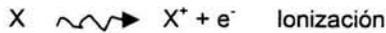


Figura 1. Procesos de transferencia de energía por radiación.

El efecto de la radiación ionizante sobre la materia es producir iones y estados excitados, estos procesos pueden ser representados como sigue,



De lo anterior podemos decir que radiación electromagnética ionizante como la gamma es una emanación de fotones con la energía suficiente para desplazar electrones de un átomo, creando iones positivos o negativos (electrones y huecos). Este tipo de radiación también puede generar la excitación del átomo en el que incidió, la cual ocurre cuando un electrón salta a una órbita o nivel de energía superior, para después volver a su órbita original, emitiendo energía en el transcurso del proceso.

Entre las características de la radiación ionizante se encuentra el ser muy energética, gran poder de penetración y producir diversos efectos en el lugar donde incide debido a que la mayoría de las veces se deposita energía, la cantidad dependerá del tipo de material.

Otro de los efectos que nos interesan cuando la radiación ionizante incide en un sólido es la formación de pares de iones constituidos por electrones con carga negativa y por el resto del átomo con carga positiva. La ionización puede prolongarse cuando los electrones desprendidos interactúan con otros átomos, dando origen a una reacción en cadena que termina cuando la energía de las partículas desciende a un nivel bajo.

1.1.2 Radiación electromagnética de alta energía

Las interacciones que tienen mayor probabilidad de ocurrir en un sólido debido a la radiación electromagnética de "alta energía" son: efecto fotoeléctrico, efecto Compton y producción de pares. En la primera la energía del fotón es absorbida completamente por un átomo en nuestro caso del sólido, en el segundo solamente parte de la energía del fotón es absorbida y el fotón dispersado tendrá una energía menor al fotón incidente, en el tercer caso el fotón es absorbido por un sólido creando un par electrón – positrón.

Los fotones de "alta energía" son considerados como aquellos con energías mayores a los 100 eV, el intervalo más importante de los fotones de "alta energía" están comprendidos entre 10 KeV y 10 MeV debido al uso de fuentes de rayos X y gamma.

La intensidad de la radiación electromagnética esta relacionada con la distancia que viaja en el medio absorbedor (Conolly, 1975), si I_0 es la intensidad del haz de fotones incidentes, x el espesor del medio absorbedor, entonces la intensidad es reducida a I , donde:

$$I(x) = I_0 \exp(-\mu x) \text{ (interacciones/seg)}$$

donde μ es el coeficiente de absorción lineal total macroscópico debido a los tres procesos de interpenetración de la radiación electromagnética. Estos procesos son el efecto fotoeléctrico, efecto Compton y producción de pares cuyos coeficientes de absorción lineal son τ , σ y κ respectivamente. Así, el coeficiente de absorción lineal total μ se expresa:

$$\mu = \tau + \sigma + \kappa \text{ (cm}^{-1}\text{)}$$

La cantidad de cada proceso que toma lugar en la absorción de energía depende del contenido del material, del número atómico Z y de la energía de radiación que es absorbida.

Para fotones con energías < 15 KeV, el efecto fotoeléctrico es dominante, en el intervalo $15 \text{ KeV} < E < 10 \text{ MeV}$, la dispersión Compton es dominante para materiales con bajo Z . El proceso de transferencia de energía de interés para este trabajo es el efecto Compton, debido al valor de la energía de los fotones.

Para medir la pérdida de energía de partículas cargadas en un material a través de la interacción coulombiana, se considera la transferencia de energía lineal (LET), la cual es la tasa promedio de depósito de energía en un medio irradiado por una partícula cargada y su valor planteado por Bethe es igual al poder de frenado $-dE/dx$. Por otro lado, para la radiación electromagnética como la gamma su LET corresponde al LET promedio de los electrones secundarios formados durante su absorción y dispersión en el material irradiado.

Se considera radiación débilmente ionizante a aquellas partícula cuyo LET es del orden de $1 \text{ KeV}/\mu\text{m}$ o inferior (electrones y positrones) y también la radiación electromagnética (rayos X y gamma) que generan en el medio electrones secundarios (el LET de los rayos gamma del ^{60}Co es de $0.3 \text{ KeV}/\mu\text{m}$).

El concepto del LET es muy importante en física de radiaciones, radiobiología y dosimetría debido a que en general el efecto de la radiación sobre los sistemas físicos y

biológicos no dependen solamente de la dosis (energía depositada por unidad de masa irradiada) si no también del LET.

1.2 DEFECTOS CRISTALOGRAFICOS

1.2.1 Clasificación de los efectos cristalográficos.

Un cristal es una distribución periódica tridimensional de átomos. El cristal perfecto es sólo un cristal con estructura ideal (Kittel, 1993), esta definición es bastante útil para desarrollos matemáticos y para explicar muchas propiedades de las redes cristalográficas. En la realidad, en un sólido cristalino su estructura no es regular por lo que ningún material cristalino es perfecto; cualquier alteración en la estructura atómica de un sólido cristalino nos produce un defecto en dicho cristal.

Los átomos en una red matemáticamente perfecta ocupan exactamente las posiciones que tienen asignadas. Si por alguna causa los átomos se desplazan de sus posiciones ideales se dice que tenemos un defecto en el cristal debido a vibraciones térmicas. Los defectos cristalográficos puntuales, vacantes e intersticiales son producidos por fluctuaciones energéticas (Charles y Thomson, 1964). Se considera que los defectos lineales y superficiales son los más importantes, al igual que los defectos en la estructura electrónica, los cuales son de gran importancia en propiedades eléctricas y magnéticas.

La clasificación de los defectos según Pert y Robb (1964) es la siguiente:

1. Vibraciones térmicas
2. Defectos puntuales
 - a) Vacantes
 - b) Intersticiales
 - c) Impurezas aisladas
3. Defectos lineales: dislocaciones
4. Defectos superficiales
 - a) Superficies externas de los sólidos
 - b) Superficies internas: contornos de grano y otros límites internos

1.2.2 Vacancias e intersticiales

Un ion de la red de un cristal que deja su posición normal en su lugar producirá una vacante, las vacancias son defectos puntuales que pueden ser originados debido a una fluctuación de energía.

Al ión o átomo que se desplaza de su posición original dentro de una red cristalina quedando en espacios de la red en donde debería de haber vacío, se les llama iones o átomos intersticiales. Este defecto se puede originar por efectos de la radiación ionizante, por átomos de impureza que originalmente estaban presentes o también pueden ser átomos agregados al cristal (impurezas).

Así, podemos hablar de dos tipos básicos de defectos puntuales:

1. Aquellos que son debidos a átomos que se han desplazado de su posición normal en la red cristalina y se sitúan en posiciones intersticiales con lo cual se dejada una vacancia en la red cristalina, al átomo intersticial y a la vacancia se le llama par de Frenkel o defectos Frenkel.
2. Aquellos en que uno de los átomos o ion de la región cercana a la superficie se desplazan hacia un sitio de la superficie dejando en su lugar una vacante móvil que puede propagarse hacia el interior del cristal, así este defecto estaría formado por una vacancia positiva y una negativa, a este defecto se le llama defecto Schottky.

Cuando en un cristal iónico se presenta una vacante de ion positivo o negativo en la red cristalina esta no será eléctricamente neutra así, según la vacante generará un campo coulombiano a su alrededor el cual actúa como una carga en magnitud igual y de signo distinto al ion ausente. Análogamente esto ocurre al tener un átomo intersticial y en los dos casos, para equilibrar la neutralidad eléctrica, existe alta probabilidad de generar cierto tipo de defectos que mantengan esta neutralidad eléctrica.

Las propiedades de diversos cristales como CaSO_4 se pueden cambiar al producirles daño por radiación o por introducción de impurezas, algunos cambios pueden ser estudiados vía defectos Frenkel y Schottky.

Al interaccionar de la radiación con ciertos cristales algunos cambios pueden ser estudiados con los defectos Frenkel, ya que se pueden explicar fenómenos en un cristal iónico como la circulación de la corriente eléctrica, el crecimiento del cristal al elevar la

temperatura, propiedades ópticas entre otras. Cierta energía (como puede ser energía de la radiación gamma) puede separar a algún ion de la superficie de un cristal, lo anterior es una hipótesis de Yakov I. Frenkel (1931) para explicar el Par Frenkel, así el átomo abandona su lugar normal desplazándose al espacio intersticial y haciendo algunos saltos de intersticio en intersticio alejándose de su lugar original provocando que se formen dos defectos: el sitio vacante y el átomo intersticio. A los defectos anteriores se les llama par hueco - intersticio o par de Frenkel.

El átomo intersticial se desliza sin problema debido a que al lado del sitio del intersticio, siempre están disponibles otros sitios intersticiales a los cuales puede saltar, por otro lado, el hueco puede ser desplazado debido a que el ion más próximo a él puede ocupar su sitio por lo que resulta vacante aquella posición que antes estaba ocupada por dicho átomo, distinguiéndose así los átomos intersticiales y las vacantes.

1.2.3 Impurezas y agregación dipolar

Las impurezas son defectos que se pueden encontrar en un sólido cristalino, los cuales son átomos o iones diferentes a la red del cristal y dichas impurezas pueden tomar una posición de sustitución o intersticial. Uno de los mecanismos para producir defectos en un cristal es el agregar impurezas a este, algunas veces las impurezas pueden provenir por contaminaciones naturales o incorporadas intencionalmente para cambiar las propiedades físicas como son la eficiencia de conductividad eléctrica.

Un ejemplo que ilustra el efecto de las impurezas es cuando al agregar un átomo del grupo V (por ejemplo Fósforo o el arsénico) al silicio o al Germanio fundidos, al enfriarse la masa fundida se cristaliza y el átomo agregado toma el lugar de un átomo del Silicio o el Germanio en su estructura del diamante así, se dice que se agregó una impureza al cristal (May, 1980). Actualmente las tierras raras se utilizan como impurezas en halógenuros alcalinos y otros tipos de cristales como el CaSO_4 dando resultados muy interesantes. La presencia de una impureza en un cristal hace que el "gap" de energía entre la banda de valencia y la banda de conducción disminuya, apareciendo estados metaestables que sirven para atrapar electrones o huecos (figura 2)

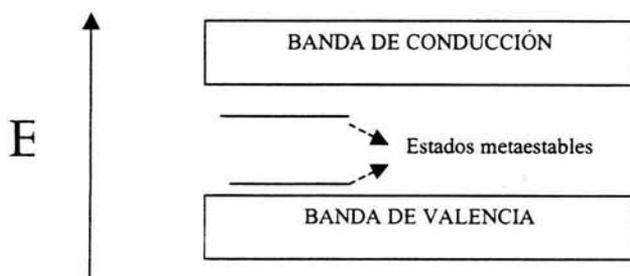


Figura 2. Esquema de las bandas de energía mostrando la presencia de estados metaestables en la banda prohibida.

Por dar un ejemplo, en los cristales de halógenuros alcalinos entre otros, las impurezas intencionales más utilizadas son las producidas por iones positivos divalentes (impurezas catiónicas divalentes), estas entran en la red generalmente en forma sustitucional, así, la impureza ocupa un lugar de un catión M^+ el cual originará un desequilibrio en la neutralidad eléctrica del cristal, estas impurezas catiónicas divalentes generan otros defectos, ya que deben compensar la carga positiva extra que tienen para equilibrar la neutralidad del cristal formando vacantes catiónicas. En experimentos se ha evidenciado que la vacante se presenta a primero y segundo vecino de la impureza (Cruz, 1998).

Las impurezas al ser móviles dentro del cristal involucran una serie de fenómenos los cuales son importantes para la conducción de electricidad y en algunos semiconductores las impurezas móviles son muy importantes para cambiar la conducción eléctrica. Un claro ejemplo de lo que puede hacer una impureza para cambiar la conductividad de un semiconductor es cuando el silicio, con sus cuatro electrones de valencia; de la red, cambiemos un átomo de silicio por otro de arsénico, que tiene cinco electrones en su capa más externa. De estos, cuatro van a intervenir en el enlace covalente con los átomos de silicio vecinos, pero el quinto electrón queda libre y puede ser itinerante en cuanto se le suministre un poco de energía. Este electrón puede transportar carga, con la consecuente modificación en la conductividad eléctrica. Otra posibilidad es cambiar un átomo de silicio por otro con sólo tres electrones de valencia. Entonces el nuevo átomo roba un electrón a alguno de sus vecinos, generando un agujero. Si este agujero se propaga, también lo hace una carga eléctrica positiva: se modifica, así, la conductividad.

Algunos de los estudios de las impurezas móviles dentro del cristal se basan en la dinámica de un átomo extra en una cadena de átomos (May, 1980; Charles y Thomson, 1964), las cuales nos ilustran las ecuaciones involucradas en este fenómeno y nos dan información de algunas propiedades del material como la conductividad eléctrica.

La agregación dipolar es muy importante en el estudio de los efectos de las impurezas en halógenos alcalinos y en otros cristales como el $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy}$ por lo que es importante entender su mecanismo. Los dipolos formados por iones M^{**} como impurezas sustitucionales en halógenos alcalinos y por una vacante catiónica, se dice que al interaccionar este dipolo con otro por interacción coulombiana y en condiciones de movilidad estos pueden tender a unirse y formar agregados (Cruz, 1998). La formación de impurezas de agregados ha sido estudiado en muchos halógenos alcalinos, sin embargo no ha sido entendida completamente y es un tema de investigación actual.

1.3 DAÑOS POR RADIACIÓN EN HALOGENUROS ALCALINOS.

El modelo de halógenos alcalinos es el que utilizaremos para describir la formación y estructura de los defectos de un cristal que se han obtenido hasta el momento, en este caso para un cristal halogenuro alcalino, estos tienen estructura simple y por esta razón son los menos complejos de estudiar, además de que existe mucha investigación de este tipo de cristales, en la actualidad la teoría de la formación de los defectos de este cristal son utilizados para comprender la configuración y formación de los defectos en otro tipo de cristales tal como el $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy}$, es por eso que a continuación se da una descripción simplificada de los daños por radiación de halogenos alcalinos.

1.3.1 Excitones

El estudio de daños por radiación en los sólidos comenzó en 1920 cuando Frenkel y Peierls estudiaron las interacciones electrón - foton en muchos procesos de conversión de energía en los sólidos, la cual se manifiesta en luminiscencia, creación de defectos, formación de polarones, etc. Cuando se irradia con fotones de alta energía un cristal puro o dopado se genera una gran concentración de electrones y huecos (Pooley y Hughes, 1975 ; Thomson, 1969), estos se forman debido a que electrones que se encuentran en la banda de valencia pueden adquirir energía para ser transferidos a la banda de conducción (figura 3), dejando huecos correspondientes en la banda de valencia; dicha energía adquirida proviene de fotones que interaccionan con los electrones (por absorción, dispersión y producción de pares).

En el año de 1930, Frenkel propuso un concepto de excitación electrónica en sólidos dieléctricos y este estado lo llamo excitón; los huecos y electrones que se forman al interaccionar los fotones con los electrones de un sólido, forman pares electrón - hueco (enlazados o separados); el electrón y el hueco tienen una interacción de Coulomb atractiva. Si el electrón de un par electrón - hueco tiene una energía tal que no puede disociarse totalmente del hueco estos permanecen enlazados formando un excitón o par Frenkel (Frenkel, 1931). Otro modelo del par electrón - hueco es aquel en que la ligadura entre el electrón y el hueco es débil, desarrollado por Mott (1938) y Wannier (1937).

El excitón, es así, un estado electrónico excitado en un cristal determinado por un acoplamiento de un par electrón - hueco; los niveles de energía de la estructura son similares a los del átomo de hidrogeno por lo que es sencillo su estudio (Schwartz, 1996). Se han desarrollado varias teorías y llevado a cabo mucha experimentación de los excitones y sus procesos de inducción en halógenuros alcalinos, estos estudios y resultados han sido muy importantes en la formación de la física del estado sólido actual ya que los resultados en un futuro pueden servir para comprender la formación de defectos en otro tipo de cristales como el $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$.

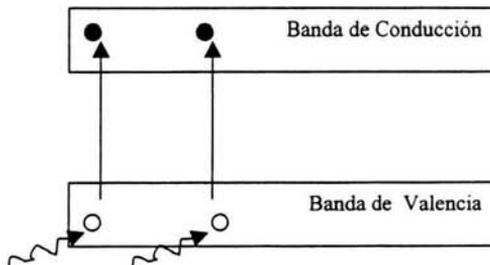


Figura 3. Esquema del modelo de bandas de energía en el que un fotón interacciona con electrones de la banda de valencia y adquieren energía suficiente para pasar a la banda de conducción, este electrón deja en su lugar un hueco con carga opuesta a él.

1.3.2 Defectos inducidos en halógenos alcalinos

Ciertos autores (Schawartz, 1996) asumen que la formación de defectos se originan por la creación de excitones los cuales como se menciono anteriormente son estados electrónicos excitados, después de esta excitación electrónica ocurren las siguientes clases de procesos (Cruz 1998):

Procesos de relajación rápidos. La excitación electrónica general causada por un fotón consiste en excitar un electrón desde una de las bandas llenas profundas (electrones de la banda k) al continuum por encima del nivel del vacío, el cual es el nivel de energía que hace que un electrón abandone el cristal cerca de la superficie. Después de este suceso los electrones y huecos energéticos reparten su energía con los otros electrones del sólido, y en consecuencia se producen nuevos pares electrón - hueco. Así una única excitación electrónica de alta energía se degrada rápidamente en una gran cantidad de excitaciones electrónicas de mucha menor energía, este proceso ocurre en unos 10^{-15} segundos.

Procesos de relajación lentos. Al formar electrones y hueco estos pueden tener una energía menor a la necesaria para producir nuevos pares, su energía se pierde lentamente, del orden de 10^{-12} segundos creando fonones por lo que los huecos quedan en la banda de valencia y los electrones en la banda de conducción.

Una vez que la energía es redistribuida, quedando huecos en la banda de valencia y electrones en la banda de conducción, los huecos y electrones se atraen unos a otros por fuerza de Coulomb pudiendo recombinarse, dicha recombinación puede ser radiativa (luminiscencia intrínseca) o no-radiativa, de esta primera se habla más adelante su importancia en el fenómeno de termoluminiscencia.

La recombinación puede ser evitada si el sólido contiene impurezas ya que estas pueden actuar como trampas para los electrones o los huecos o ambas. Como se mencionó en el inciso 1.2.3 una impureza en un cristal crea estados metaestables, los cuales actúan como trampas de electrón o huecos para evitar la recombinación (McKeever, 1988). Las impurezas utilizadas en cristales como CaSO_4 han sido Mn, Dy y Tm (Horowitz, 1984 ; McKinlay, 1981).

Algunos de los defectos conocidos como centros también inducidos por radiación ionizante son:

Centro V_k

Los huecos producidos durante la irradiación pueden combinarse con dos iones halogenuros dando una molécula ionizada de halógeno (ion – molécula) en la que la distancia de los dos halógenos es menor que la de la red perfecta, este es un defecto que se conoce como hueco "auto atrapado" (o polaron del hueco con una masa efectiva muy grande), este defecto se produce en todos los halogenuros alcalinos, actualmente se le designa como centro X_2^- (en notación de Sonder y Sibley, 1972), o también se le designa por su notación de centro V_k , y el mecanismo de recombinación del hueco con el electrón $V_k + e$.

La formación de este defecto se debe a que la vida media del estado excitado es más larga que el tiempo requerido por los iones para relajarse en la configuración de ión molecular. Diversos estudios (Horowitz, 1984; McKeever, 1988) de este defecto han sido llevados a cabo y en estos se ha observado que este defecto tiene simetría $\langle 110 \rangle$ y puede ser orientado por luz polarizada (figura 4).

Centros H.

Existe otro centro que es trampa para huecos llamado centro H, el cual consiste en un átomo halógeno neutro el cual está colocado en posición intersticial en la fila de iones halógenos. El centro H no tiene carga neta comparada con la red perfecta (figura 4).

La temperatura de irradiación juega un papel importante en la formación de centros como por ejemplo en el centro H, si esta temperatura está por encima de la de difusión del centro H, éste puede formar centros complejos de tipo de impureza - H (Itoh, 1972), $H - V_k$ o agregados intersticiales junto a impurezas (López y col., 1976). Los centros impureza-H se denominan centros H_A cuando la impureza es monovalente y H_2 cuando es divalente. A temperaturas bajas de irradiación baja pueden formarse centros I por captura de electrones por el centro H (Itoh, 1972).

Centros F.

El centro α formado por una vacante de halógeno es en sí una trampa efectiva para capturar un electrón y con esto poder restablecer un equilibrio electrostático de la red. A esta nueva formación se le denomina un centro F (figura 4), este es el que ha sido estudiado más que otro tipo de centros teórica y experimentalmente por lo que también es el más comprendido (Compton y Schulman, 1963).

Este electrón atrapado en una vacante aniónica, al sufrir transiciones electrónicas desde su estado fundamental al excitado, emite en el visible en la mayoría de los halógenuros alcalinos (no para LiF). Se denomina " Centro de color" y la expresión "coloración" de un cristal significa producción de centros F. Debido a que el centro F es una vacante de ión halógeno con un electrón al ser formado bajo irradiación es de esperar ver un centro intersticial (centro H) complementario producido a la misma velocidad.

La formación de los defectos anteriores dependen de la temperatura de irradiación, intensidad y contenido de impurezas.

El efecto de las impurezas ha sido estudiado en los últimos años en diversos trabajos ya que estas pueden dar nuevas emisiones debidas a perturbaciones o cambios en el excitón. Entre estos trabajos esta el estudio de cristales dopados con otro halógeno y así se han observado emisiones debidas a un excitón mezcla de los halógenos. Para caracterizar el estado excitado de impureza halógena se utiliza el término "excitón localizado", este estado tiene la misma configuración electrónica que los halógenos de la red (p^6). Dopando por ejemplo NaCl con Br pueden obtenerse excitones tipo ($ClBr + e^-$) y tipo ($Br_2 + e^-$) en un cristal de NaCl (Cruz, 1994).

Los defectos producidos por la irradiación como los centros H, F, V_k , y I entre otros pueden estar en diferentes configuraciones como $I + \alpha$ o $F + H$, la mayoría de estos defectos son conocido como defectos Frenkel los cuales se habían mencionado anteriormente; la energía de un par Frenkel depende de su configuración, cuando un cristal irradiado es calentado, la liberación de la energía almacenada al producirse la aniquilación de defectos complementarios (par Frenkel) se llevara a cabo en varios eventos, cada uno correspondiente a un par Frenkel distinto, dicha aniquilación al combinarse el par complementario produce una liberación de energía almacenada en la forma de energía térmica (cedida a la red y/o luz).

La configuración de los defectos que se han analizado en el modelo de halógenuros alcalinos es posible que se puedan formar en otro tipo de cristales, debido a la complejidad de otros cristales todavía no hay con formalidad publicaciones de los defectos que se forman en otros cristales como el $CaSO_4:Dy$. Los electrones y huecos generados por la radiación en un cristal pueden recombinarse al aplicarles el fenómeno de termoluminiscencia, el cual se analizará en la siguiente sección.

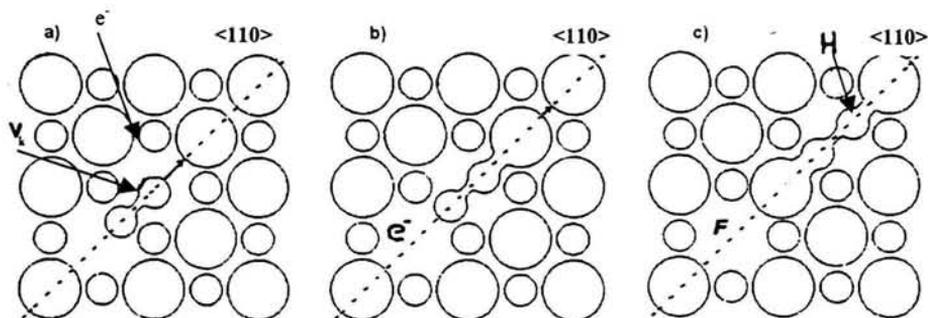


Figura 4. (a) Hueco auto atrapado (centro V_k) y electrón libre después de la radiación
 (b) Disociación de un excitón autoatrapado
 (c) Centro H

1. 4 DOSIMETRIA TERMOLUMINISCENTE.

1.4.1 Luminiscencia

Para describir y definir el fenómeno de luminiscencia es necesario enunciar la Ley de Stokes,

Cuando la radiación incide sobre la materia algo de esta energía puede ser absorbida y re - emitida como luz con una longitud de onda mayor que la incidente.

El proceso que se menciona en la ley anterior es el proceso de luminiscencia, entre otras características de la luz emitida en este proceso tenemos que la longitud de onda es propia de la sustancia luminiscente.

Los fenómenos de luminiscencia se clasifican según:

1. El tiempo en que la luz es emitida (fosforescencia y fluorescencia).
2. El tipo de luz utilizada para excitar la emisión. La fotoluminiscencia (excitación óptica o por luz ultravioleta), radioluminiscencia (excitación por radiación nuclear) y cátodoluminiscencia entre otros.
3. Modo de estimulación de la emisión de luz (calentamiento entre otros).

Lo más conveniente para distinguir entre fosforescencia y fluorescencia es el estudiar el efecto de la temperatura en el decaimiento luminiscente. La fluorescencia es independiente de la temperatura y la fosforescencia tiene una dependencia muy fuerte de la temperatura (figura 5).

La excitación luminiscente se puede explicar mediante el modelo de estados de energía, en este, electrones en estado base (estado g) al transferirles energía (como la de la radiación gamma) son desplazados hacia estados de energía mayores (estados excitados e), este proceso se clasifica en fluorescencia y fosforescencia (figura 6).

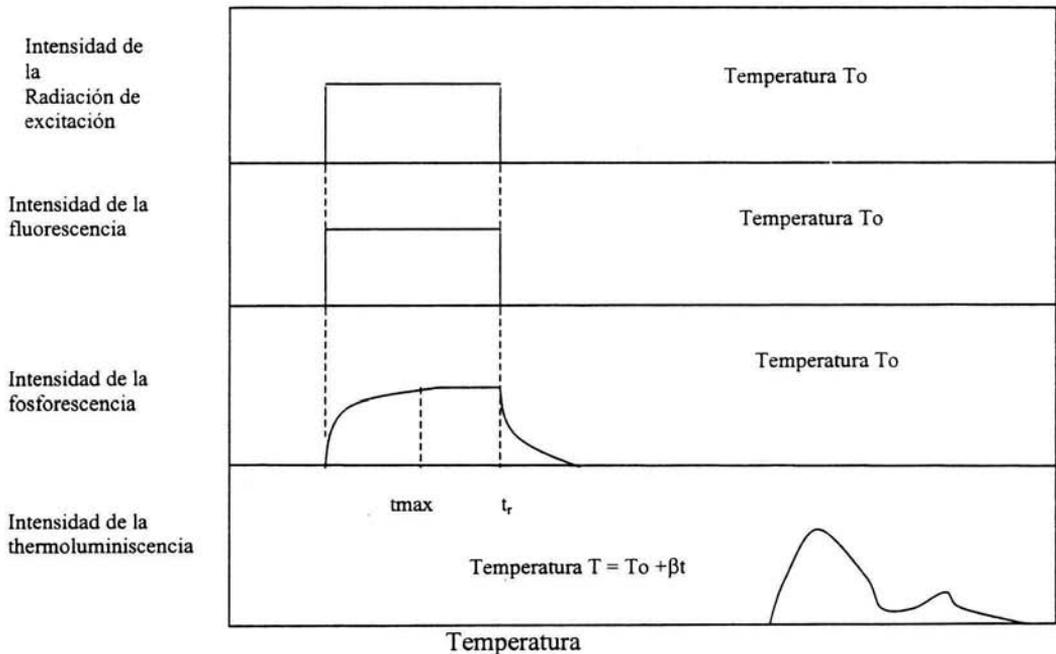


Figura 5. Relación entre absorción de radiación y la emisión de fluorescencia, fosforescencia y termoluminiscencia, T_0 es la temperatura a la cual toma lugar la irradiación; β es la razón de calentamiento; t_r es el tiempo al cual la radiación finaliza y el decaimiento de fosforescencia empieza.

En la emisión de la luz se da en un tiempo característico τ_c , después de la absorción de radiación del electrón, este tiempo ayuda a clasificar el proceso de luminiscencia en fluorescencia con $\tau_c < 10^{-8}$ s y fosforescencia con $\tau_c > 10^{-8}$ s, esta última se da si existen niveles metaestables "m" en el "gap" de las energías prohibidas (figura 6). La fosforescencia la cual puede ser dividida en dos tipos principales normalmente (Garlick y Wilkins, 1945 ; Randall y Wilkins, 1945 ; Curie, 1960), periodo corto ($\tau_c < 10^{-4}$) y periodo largo ($\tau_c > 10^{-4}$).

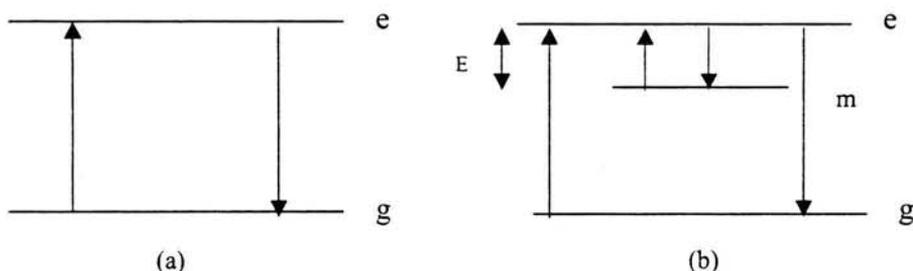


Figura 6. Modelo de estados de energía para transiciones de energía en la producción de (a) fluorescencia y (b) fosforescencia.

En la figura 6 se observa que el fenómeno de fosforescencia existirá si los niveles de energía pueden ser modificados por la presencia de niveles metaestables "m" en el "gap" de las energías prohibidas entre "g" y "e". Un electrón excitado de "g" a "e" puede ahora ser atrapado en "m" permaneciendo en este nivel de energía hasta que adquiera una energía E para regresar a "e" y llevar a cabo una transición normal hasta "g", seguido de una emisión de luz. El tiempo que se tarda el electrón en la trampa "m" es el retardo de la fosforescencia.

Para hallar una expresión del tiempo característico τ_c en fosforescencia, de argumentos termodinámicos se puede mostrar que el tiempo promedio de estancia en la trampa a una temperatura T está dado por:

$$\tau_c = s^{-1} \exp(E/kT) \text{ (seg)}$$

donde s (seg^{-1}) es una constante y E es la diferencia de energía entre m y e (llamada la profundidad de la trampa); k ($\text{j} \cdot \text{K}^{-1}$) es la constante de Boltzmann y T la temperatura en

grados Kelvin. Con esta ecuación se demuestra que en el proceso de fosforescencia es exponencial e inversamente dependiente de la temperatura (McKeever, 1988).

1.4.2 Termoluminiscencia

La termoluminiscencia es un fenómeno más de la gran variedad de los de luminiscencia; la termoluminiscencia es la emisión de luz de materiales aislantes o semiconductores cuando son calentados después de que absorbieron energía de radiación. Así, para que ocurra el proceso de termoluminiscencia primeramente será necesario interaccionar radiación con la suficiente energía para liberar electrones de un átomo de cierto material mediante efecto Compton. Al liberar los electrones en su lugar se crean huecos, tanto los electrones y los huecos pueden viajar a través del material y ser atrapados por impurezas que contiene el material formando defectos. En el caso del fenómeno de termoluminiscencia se aplica energía calorífica, provocando que los defectos se hagan móviles teniendo una alta probabilidad de aniquilarse o recombinarse, al ocurrir la recombinación se emite luz.

Los argumentos anteriores nos sirven para poder dividir la producción de termoluminiscencia en dos etapas:

- i) Ionización de los átomos y atrapamiento de los electrones y huecos – Producción de pares y atrapamiento de pares
- ii) Recombinación de los electrones y huecos con emisión de luz – Recombinación de pares.

El modelo de bandas de energía es utilizado para ilustrar cada una de las etapas anteriores como se muestra en la figura 7, en esta figura un fotón le transfiere energía a un electrón de la banda de valencia y este pasa a la banda de conducción (paso 1). Estos electrones son libres de moverse a través del cristal (paso 2), si existen niveles de atrapamiento tales como E, los electrones libres pueden ser atrapados en estos niveles (paso 3). Al producirse electrones libres se producen huecos con carga positiva los cuales pueden ser móviles en términos de energía a través de la banda de valencia (paso 2'). Estos huecos pueden ser atrapados (paso 3').

Los electrones atrapados producen diversos centros que ya han sido descritos anteriormente. Muchos de los centros de huecos son térmicamente inestables y pueden decaer rápidamente a temperatura ambiente (paso 4'). Los electrones atrapados

permanecen en sus trampas debido a que no tiene suficiente energía para escapar. Esto es determinado por dos factores: la profundidad de la trampa y la temperatura del material, si la temperatura del material se incrementa, los electrones atrapados pueden adquirir suficiente energía térmica y ser liberados (paso 4). Los electrones liberados pueden recombinarse con los huecos en los centros luminiscentes tales como L y el exceso de energía es irradiado como luz visible o fotones ultravioleta (paso 5), los pasos anteriores son necesarios para el mecanismo del fenómeno de termoluminiscencia (McKinlay, 1981).

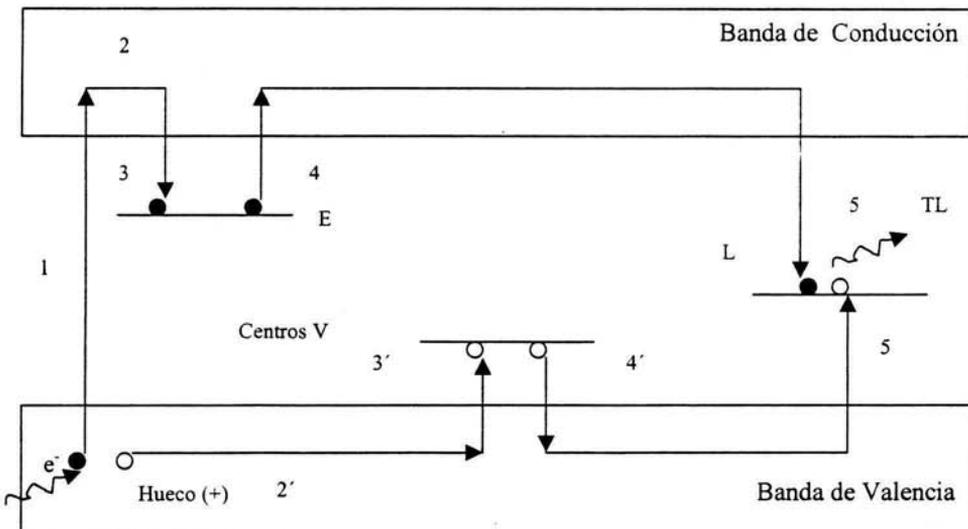


Figura 7. Modelo simple de las bandas de energía para termoluminiscencia.

1.4.3 Modelos de Randall y Wilkins, Garlick y Gibson

Para cuantizar la intensidad termoluminiscente se han creado varios modelos (McKeever, 1985) que a continuación se describen.

Randall y Wilkins (1945) fueron los primeros en llevar a cabo una teoría formal de la fosforescencia, esta teoría asume que el electrón una vez que a sido liberado del estado metaestable m (trampa), la probabilidad de regresar al estado "m" es mucho menor que

la probabilidad de regresar a su estado base "g". La intensidad de la emisión de fosforescencia en un instante $I(t)$ es proporcional a la razón de recombinaciones (la razón de las transiciones de $e \rightarrow g$). Así, las transiciones $e \rightarrow g$ son función de las transiciones $m \rightarrow e$ por lo que $I(t)$ es proporcional a la razón de liberación de electrones de las trampas.

Lo anterior se puede expresar matemáticamente con la siguiente expresión,

$$I(t) = -C \frac{dn}{dt} = C \frac{n}{\tau} \quad (\text{electrones/seg}) \quad (1)$$

donde C (adimensional) es la constante de proporcionalidad y n es el número de electrones atrapados en m . Integrando (1) tenemos

$$I(t) = I_0 \exp(-t/\tau) \quad (2)$$

donde I_0 es la intensidad en un tiempo $t = 0$. A temperatura constante, el decaimiento es así una simple exponencial o decaimiento de primer orden.

En la práctica sin embargo no es exponencial, Randall y Wilkins también le dieron cierto interés a la probabilidad de que una vez que el electrón es liberado de la trampa, el electrón puede regresar a "m" o recombinarse con "g". Así, en este caso la razón de recombinaciones no es proporcional al número de electrones, si no también al número de sitios de recombinación permitidos y asumiendo lo anterior la intensidad de emisión de fosforescencia esta dada por la siguiente expresión,

$$I(t) = -C \frac{dn}{dt} = \alpha n^2 \quad (3)$$

donde α es una constante a una temperatura dada.

De (1) y (3) la intensidad de fosforescencia es ahora proporcional a n^2 , integrando obtenemos,

$$I(t) = \frac{I_0}{(n_0 \alpha t + 1)^2} \quad (4)$$

Esta ecuación de decaimiento es de segundo orden, donde la constante α (seg^{-1}) esta relacionada con el promedio de vida media τ . Si la temperatura se incrementa a una razón lineal $\beta = dT/dt$, cuando T se incrementa, τ decrece y en consecuencia la intensidad

se incrementa debido a la liberación de los electrones desde sus trampas y tomando lugar su recombinación. Eventualmente, cuando las trampas se agotan, la intensidad empieza a decrecer, así la gráfica de $I(t)$ vs temperatura tiene la forma de un pico. Debido a que la luminiscencia ha sido estimulada por calor la intensidad es termoluminiscente. Un pico termoluminiscente es mostrado en la figura 5 y se compara con la fluorescencia y la emisión fosforescente. La temperatura a la cual está el máximo pico ocurre en la liberación del electrón que está en la trampa. El área bajo el pico está relacionada con el número de trampas que estaban llenas la cual está relacionada con la cantidad de radiación absorbida por la muestra.

Para el análisis del vaciado de las trampas durante el calentamiento se han desarrollado diferentes modelos y el más estudiado ha sido el modelo simple o ecuación cinética de primer orden. Este modelo fue desarrollado por Randall y Wilkins (Horowitz, 1984 ; Mckeever, 1988), los cuales no consideran el reatrapamiento, ellos llegaron a la siguiente expresión.

$$I(T) = n_0 s \exp(-E/kT) \exp\left[-(s/\beta) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT) dT\right] \quad (\text{electrones/seg}) \quad (5)$$

la ecuación anterior es la ecuación de primer orden cinético (monomolecular) de Randall y Wilkins. En esta expresión n_0 es el número de electrones atrapados a una temperatura T_0 , s una constante definida anteriormente, β la razón de calentamiento dada por,

$$\beta = \frac{dT}{dt} \quad (\text{K/seg})$$

el modelo de cinética de segundo orden fue propuesto por Garlick y Gibson (1948), en este modelo el reatrapamiento es considerado, la expresión para este modelo es la siguiente,

$$I(T) = n_0^2 s' \exp(-E/kT) / \left[+ (n_0 s' / \beta \times \int_{T_0}^T \exp(-E/kT) dT) \right]^2 \quad (6)$$

donde $s' = s/N$ (seg^{-1}) y N es el número de trampas permitidas del electrón, s fue definido anteriormente.

En la figura 8 se observan las gráficas de los picos de primer y segundo orden cinético, ambas curvas están normalizadas para dar la misma altura del pico, el pico termoluminiscente de primer orden cinético es antisimétrico, mientras que el pico del

segundo orden es simétrico. Las ecuaciones (5) y (6) muestran que el incremento en ambos casos es dominado por el término de la forma $a \cdot \exp(-E/kT)$.

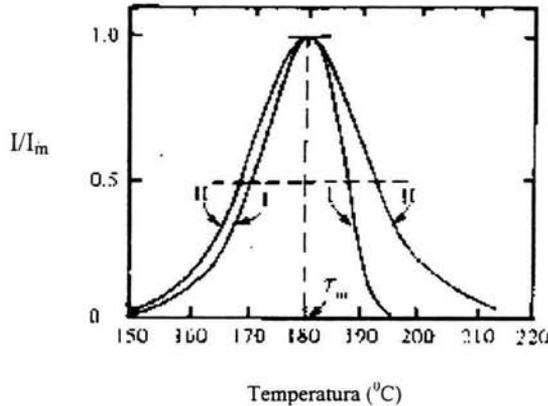


Figura 8. Picos termoluminiscentes de primer (I) y segundo (II) orden. (Mckeever, 1988)

En varios casos la forma de la curva de brillo no puede ser descrito por la ecuación de primer y de segundo orden. May y Patridge (1964), sugirieron un modelo para el caso de orden general el cual puede ser escrito por

$$I(t) = dn/dt = n^b s' \exp(E/kT) \quad (7)$$

donde b es el orden cinético el cual incluye el 1 y 2. Integrando con los límites utilizados para el orden 1 y 2 obtenemos para $b \neq 1$,

$$I(T) = s' n_0 \exp(-E/kT) \left[1 + ((b-1)s'/\beta) \times \int_{T_0}^T \exp(-E/kT) dT \right]^{\frac{b}{8b-1}} \quad (8)$$

donde $s'' = s' n_0^{(b-1)}$ (seg^{-1}), s' fue definido anteriormente, esta es la ecuación de orden general para termoluminiscencia. Otros modelos han sido desarrollados considerando la desconexión térmica de las trampas entre ellos el modelo de Chen (1981).

Así, el orden cinético dependerá del número de veces que sean reatrapados los electrones libres en un cristal, en la realidad, se busca un modelo que se aproxime a los resultados obtenidos experimente de un cristal, aunque no siempre se tiene éxito.

1.4.4 Dosimetría de radiación

La dosimetría de radiación (o simplemente dosimetría) es la parte de la física que se encarga de medir la energía de radiación absorbida que resulta de la interacción de la radiación ionizante sobre la materia.

Un dosímetro en general se define como un dispositivo que es capaz de proveer una lectura r , la cual es una medición de la energía absorbida D , depositada en un volumen sensible V por radiación ionizante (Mases, 1989).

Los dosímetros pueden ser de dos tipos:

1. Físicos
2. Químicos

En la siguiente lista se encuentran algunos tipos de dosimetricos los cuales se utilizan dependiendo del tipo de medición de radiación que se este llevando a cabo

- a) Detectores de estado sólido
- b) Detectores de centelleo
- c) Cristales en los cuales cambia la resistencia en presencia de un campo de radiación (CDS).
- d) Materiales que cambian de color por la absorción de radiación
- e) Materiales que cambian la absorbancia óptica con la radiación.
- f) Dosímetros químicos en los cuales se mide el cambio químico (por ejemplo Fricke)
- g) Dosímetros radiofotoluminiscentes (RPLD)
- h) Dosimetría Lioluminiscente
- i) Emisión exoelectrónica estimulada térmicamente
- j) Dosimetría de resonancia espín electrónico
- k) Conductividad estimulada térmicamente

Una de las áreas de aplicación mas importante de la dosimetría de radiación es el área medica , entre otras áreas de aplicación esta la medición y control de la fuente de radiación utilizadas por el hombre y la investigación de la física y química del estado

sólido. En la dosimetría se incluye cualquier técnica que mida la radiación de ionización (por ejemplo la TL).

En este trabajo se utilizó el dosímetro radiofotoluminiscente cuyo método de excitación se basa en hacer inducir sobre éste radiación ionizante (formando defectos). La técnica para medir la energía de radiación absorbida se basa en el fenómeno de termoluminiscencia, esta se llama dosimetría termoluminiscente. En general el dosímetro utilizado con esta técnica se le llama material o dosímetro TL.

La dosimetría TL es versátil, esto se debe entre otros, al tamaño del material TL que se utiliza, puede ser situado directamente en la región de interés, en cierto intervalo la emisión de luminiscencia es proporcional a la energía de radiación absorbida.

Las características importantes (Mahesh, Weng y Furetta, 1989) de un dosímetro termoluminiscente son:

Curva termoluminiscente. En dosimetría termoluminiscente se utiliza el término curva termoluminiscente (curva TL o curva de brillo), para indicar la representación gráfica de la cantidad de luz emitida (intensidad TL) en función de la temperatura o del tiempo. Esta curva es el espectro de emisión de luz termoluminiscente, otros autores nombran a esta representación curva de brillo. En esta, pueden presentarse uno o varios máximos, llamados picos principales, el área bajo la curva de estos picos es proporcional a la concentración de electrones atrapados en las trampas.

La forma de la curva de brillo depende de diversos factores entre los que se encuentran el material del dosímetro, la dosis absorbida, el tratamiento térmico, los defectos del material dosimétrico, las impurezas presentes, etc.

Sensibilidad. La sensibilidad de un dosímetro TL puede definirse como la cantidad de luz emitida por el material por unidad de exposición a la radiación, y está determinada por su eficiencia TL intrínseca, η , la cual representa la proporción de la energía absorbida que se transforma en fotones luminosos.

Para determinar este parámetro surgen muchos inconvenientes debido a que depende de las características del equipo lector, tales como la respuesta espectral del tubo fotomultiplicador, el coeficiente de amplificación electrónica entre otros y de las características físicas del material TL, en las que la transparencia óptica es importante.

La sensibilidad de un dosímetro TL puede incrementarse al introducir un elemento extraño en la estructura del cristal del material dosimétrico, el cual funciona como activador del fenómeno de termoluminiscencia (Horowitz, 1984 ; Mckeever, 1988 ;

Mahesh y Weng, 1989). La sensibilidad de un dosímetro TL es válida sólo para el equipo y las condiciones a las cuales se determinó. Generalmente esta propiedad se verifica considerando al TL-100 como referencia y normalizando las curvas.

Umbral de detección. Esta característica puede ser definida como la dosis más pequeña que puede ser medida significativamente, respecto a la dosis cero de un dosímetro no irradiado. Esta luminiscencia es similar a la espuria observada en algunos materiales; por lo que es conveniente utilizar atmósfera inerte al efectuar algunas lecturas. Lo mas común es utilizar N₂.

Respuesta termoluminiscente en función de la dosis absorbida. Para evaluar la dosimetría de un material TL (dosímetro TL) es necesario tener una curva de respuesta del dosímetro TL en función de la dosis absorbida, esta comprende tres regiones: lineal, supralineal y de saturación (ver figura 9).

La región lineal es la utilizada para efectuar medidas con una máxima precisión y es la mas práctica. También en esta región la respuesta termoluminiscente puede considerarse proporcional a la dosis absorbida por el dosímetro durante la irradiación.

En la región supralineal, la sensibilidad de muchos materiales TL se incrementa con la dosis absorbida. El fenómeno involucrado en esta región aún no está bien determinado y puede ser diferente según el material del dosímetro.

La región de saturación se alcanza cuando todas las trampas están ocupadas. Así, surge un fenómeno de inversión de la sensibilidad, consecutivo a la coloración de los cristales y a la destrucción de ciertos elementos de la estructura cristalina por efecto de la irradiación. Esta región en la mayoría de los dosímetros TL es alcanzada entre 10⁴ y 10⁶ Gy. En esta región las mediciones serán demasiado grandes.

Respuesta termoluminiscente en función de la energía y del tipo de radiación. En diversas investigaciones se ha observado que la respuesta termoluminiscente depende de la energía y del tipo de irradiación. Se ha determinado que para energías menores a 150 KeV predomina el efecto fotoeléctrico debido a que el coeficiente másico de absorción de energía considerablemente en función de la energía de los fotones y del número atómico efectivo del material considerado (Mckeever, 1988 ; Mahesh y Weng, 1989 ; Denaro y Jayson, 1972 ; Azorín, 1990). Así, los materiales compuestos por número atómico bajo, presentan una respuesta que no varía tanto con la energía de la radiación. Los materiales

cuyo número atómico efectivo es alto como el CaSO_4 y el Al_2O_3 presentan una sensibilidad muy alta a bajas energías (Mahesh y Gene, 1989).

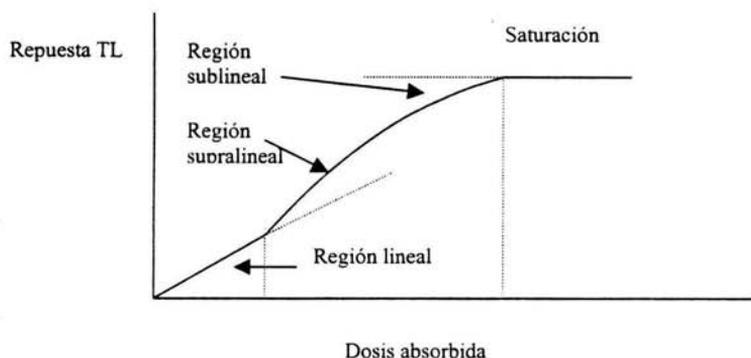


Figura 9. Representación gráfica de la respuesta termoluminiscente en función de la dosis absorbida, mostrando las regiones lineal, supralineal y sublineal.

Las condiciones ambientales pueden influir en la respuesta termoluminiscente y estas pueden ser las siguientes:

Humedad. La superficie de algunos cristales puede ser alterado por la humedad, por lo que se modifica su transparencia y por consiguiente su sensibilidad.

Efecto de la luz. Al exponer un dosímetro TL a la luz, los efectos pueden ser:

1. Aumento de la señal de fondo, cuando la energía es suficiente para hacer que los portadores de carga sean atrapados por algunas trampas. En el caso, por ejemplo, del $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ o del $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$, la exposición prolongada a la luz natural produce un incremento apreciable en el fondo (Mckeever, 1988).
2. Desvanecimiento de la información por estimulación óptica de los portadores de carga atrapados en las trampas. Este fenómeno es particularmente importante en algunos dosímetros TL como el $\text{CaSO}_4:\text{Sm}$.

Es recomendable que los dosímetros TL deban mantenerse protegidos de la luz natural en un contenedor y sacarlos en el momento de efectuar las mediciones. Los dosímetros utilizados en este trabajo se colocaron en un contenedor protegiéndose de la luz hasta efectuar la lectura.

Temperatura. La variación de temperatura hace que la movilidad de los átomos sea diferente lo cual puede influir en el atrapamiento de los electrones generados por la radiación y por lo tanto en su respuesta TL.

Para que un material termoluminiscente sea útil en dosimetría, debe cumplir las siguientes características:

- Capaz de producir en él alta concentración de electrones y/o huecos al interactuar la radiación sobre este, y una alta eficiencia en la emisión de luz en el proceso de recombinación.
- Suficiente estabilidad de las trampas para no provocar desvanecimiento indeseable aun en largos períodos de almacenamiento a temperatura ambiente o temperaturas ligeramente mayores; tales como lugares tropicales o desérticos; o como en el caso de los usos médicos, la temperatura del cuerpo humano (37 °C)
- Un espectro de emisión que respondan a la mayoría de los tubos fotomultiplicadores, y tal que interfiera lo menos posible con la emisión infrarroja del Material TL y sus alrededores (entre 350nm 600nm).
- Que el pico principal esté entre 180 y 250 °C; ya que a mayor temperatura la emisión infrarroja de la muestra caliente y del porta muestras, interfieren con las mediciones para dosis bajas.
- Una distribución de trampas que no complique el proceso de evaluación por la presencia de picos de muy baja o muy alta temperatura .
- Resistencia ante agentes ambientales perturbadores de la respuesta, tales como : luz, temperatura, humedad, solventes orgánicos, humos y gases.
- Su respuesta debe ser lineal en un amplio intervalo de dosis y prácticamente independiente de la energía de radiación y de la intensidad de dosis.
- Fácil de manipular, no tóxico, barato, que no se deteriore con el tiempo, que no presente triboluminiscencia, etc.

CAPÍTULO II

Procedimiento experimental

2.1 Descripción de las muestras.

Las muestras utilizadas en los experimentos son dosímetros fabricados de material TL cuya composición es de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, los dosímetros son comerciales (TLD-700) y son utilizados para medir radiación absorbida por materiales que se encuentran a temperatura ambiente. Los dosímetros se fabricaron en China. Los dosímetros que se utilizaron en este trabajo son cristales opacos cuyas dimensiones son 3mm X 1mm X 1mm. Cuando el sulfato de Calcio (CaSO_4) es dopado con Mn, Sm, Dy y Tm se obtiene uno de los materiales mas sensibles a la respuesta TL, de estos los dos últimos son considerados los mas estables. En nuestros dosímetros el dopante utilizado es el Dy, con una concentración de 0.18% m/w. Diversos autores (Abubankar, 1990 ; Azorín, 1989 ; Chandra, 1986 ; Charalambous, 1990 ; Kása, 1990 ; Las, 1980 ; McKeveever, 1988 ; Morgan, 1986 ; Souza, 1993) han publicado que el pico principal de la curva de brillo TL del $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ es causado por el Dy. En la mayoría de la literatura se habla que la temperatura a la cual ocurre el máximo pico en la curva de brillo es a 210 °C y que el pico de misión espectral ocurre entre 478 y 571 nm. La historia señala que entre 1968 y 1971 Yamashita llevo a cabo estudios importantes de este dosímetro entre los que se encuentra un método excelente para la producción de Sulfato de Calcio dopado con tierras raras como el Dy, también fue el primero en producir este tipo de dosímetros.

2.2 Tratamiento térmico.

Antes de ser irradiadas las muestras, se someten a una pre-irradiación la cual consiste en recibir un tratamiento térmico, esto es con el fin de borrar la señal acumulada durante su almacenamiento y disolver cualquier dipolo complejo así como cualquier fase de precipitación que pudiera estar presente en los dosímetros.

El procedimiento para el tratamiento térmico consistió en colocar los dosímetros con unas pinzas dentro de un vaso de precipitados de 10 ml procurando que no se toquen entre ellos, la temperatura del horno fue elevada de 30 a 400 °C y una vez que la temperatura se estabilizó se metió dentro de este el vaso con los dosímetros, el cual se centro dentro del horno, en esa posición se mantuvieron durante 1 hora, a

continuación se retiró del horno el vaso con los dosímetros y con unas pinzas se colocaron los dosímetros en un disco de cobre de diámetro 3 cm y alto 2 cm para que se enfríen a temperatura ambiente para después ser irradiados.

2.3 Técnica de Termoluminiscencia.

La técnica que se utilizó para poder leer la dosis de las muestras irradiadas es la termoluminiscente. Esta técnica consiste en leer la señal luminosa (en nC) emitida cuando las muestras previamente irradiadas son calentadas. El equipo utilizado para este fin es un equipo lector Harshaw 3500, el cual consta de un módulo que contiene el sistema de calentamiento (plancheta), un tubo fotomultiplicador (sistema de detección de luz) y un sistema electrónico que integra en el tiempo la señal eléctrica que sale del tubo (sistema de medición de la señal), este módulo está acoplado a una computadora en la cual se obtiene una curva de brillo y la respuesta (lectura) TL en nC (ver figura 10).

2.4 Fuente de radiación.

Con el fin de irradiar las muestras se utilizó una fuente de radiación Gamma (Gammacell 200). Esta fuente se encuentra localizada en el Instituto de Ciencias Nucleares de la UNAM. Este irradiador consiste de 24 fuentes de ^{60}Co fijas colocadas en un blindaje de plomo, la actividad de la fuente nominal era de 135 TBq en octubre de 1967, las muestras se colocaron en una cavidad cilíndrica de 8.85 cm de diámetro y 14 cm de altura aproximadamente, esta cavidad está montada sobre un émbolo de acero inoxidable que puede bajar y subir mediante un motor eléctrico, por lo anterior la dosis absorbida depende únicamente del tiempo de irradiación al colocar los dosímetros en la misma posición.

El radioisótopo de ^{60}Co decae a un estado excitado de ^{59}Ni emitiendo partículas β (99 % de los decaimientos) con energía máxima de 0.31 MeV, el ^{60}Ni decae a su estado base emitiendo dos rayos γ consecutivos de 1.17 y 1.33 MeV. Como las muestras deben ser irradiadas con radiación gamma, las partículas β emitidas son detenidas por el blindaje de las fuentes, dejando pasar solo la radiación gamma.

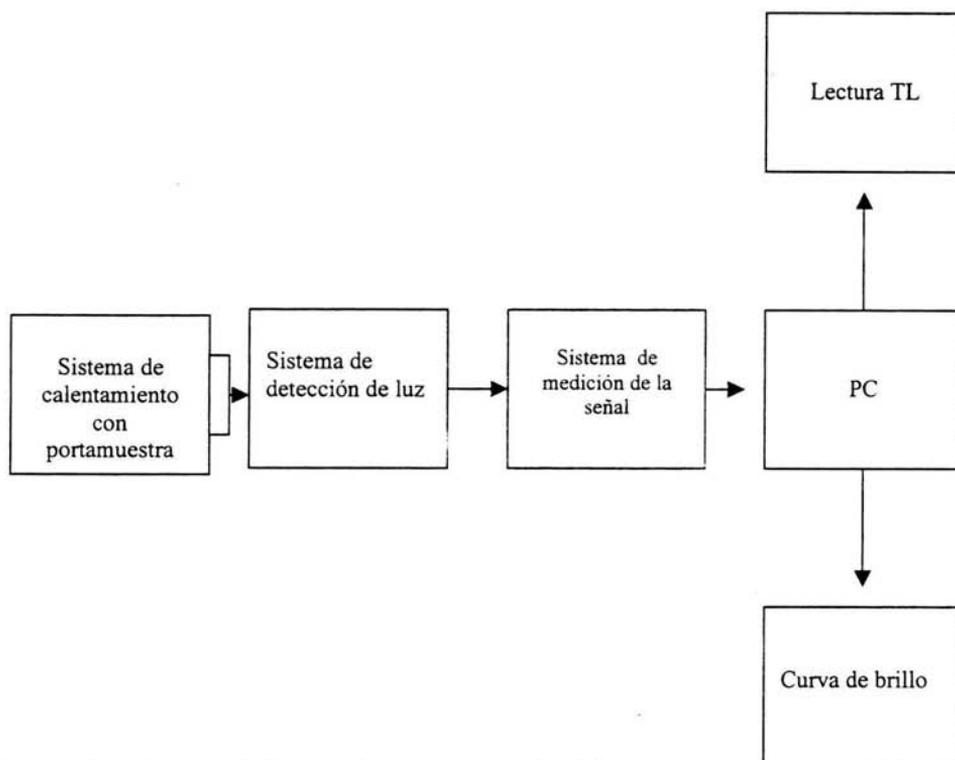


Figura 10. Diagrama de bloques del equipo termoluminiscente.

2. 5 Calibración de la fuente de irradiación

Para conocer razón de dosis de la fuente irradiación en el sitio donde serán irradiados los dosímetros, se utilizó dosimetría química. El dosímetro empleado fue el llamado dosímetro Fricke, el cual está compuesto de una solución de 0.001M de FeSO_4 , 0.8 N de H_2SO_4 y NaCl preparado con agua tridestilada, produciéndose iones férricos (Fe^{3+}) por acción de la irradiación en presencia de O_2 . El cambio en el número de iones férricos entre una muestra irradiada y una no irradiada produce una diferencia en la densidad óptica $\Delta(\text{OD})$ de las muestras, según la literatura en el intervalo de dosis de 40 a 400 Gy es proporcional a la dosis absorbida.

La solución Fricke se preparó utilizando agua tridestilada y material de vidrio tratado de acuerdo a las técnicas empleadas en Química de Radiaciones (Jayson y Denaro, 1972). Se llenaron tubos de vidrio con esta solución luego se colocaron dentro de un

contenedor de poliuretano el cual se centro dentro de la cavidad de la fuente de irradiación .

El cambio de densidad óptica $\Delta(\text{OD})$ se midió utilizando un espectrómetro a 304 nm, utilizando como blanco la solución Fricke sin irradiar. Una vez que se midió $\Delta(\text{OD})$, la dosis absorbida promedio se obtuvo que el resultado de la tasa de dosis en el punto de irradiación de la fuente fue 0.809 Gy/min.

2.5 Irradiación de las muestras

Temperatura de irradiación de 293 K

Con el fin de irradiar los dosímetros a temperatura de irradiación de 293 K, obtener la respuesta TL y las curvas de brillo para diferentes dosis se procedió como sigue:

- i) Se aplicó a las muestras (no irradiadas por radiación gamma) un tratamiento térmico para borrar señales acumuladas.
- ii) Se tomo la lectura TL de las muestras para comprobar que no tengan los dosímetros señales acumuladas. La plancheta del equipo TL fue calentada desde la temperatura ambiente hasta 400 °C durante 200 s con una razón de calentamiento de 2 °C/s en un atmósfera de N₂. El voltaje del tubo fotomultiplicador en promedio fue de 720 V.
- iii) Se colocaron las muestras dentro de un portamuestras de acrílico con diseño especial elaborado previamente. A continuación se envolvió el portamuestras con plástico negro para protegerlos de la luz natural, posteriormente se colocaron dentro de un vaso de polietileno el cual tenía dentro un soporte en el que se colocaba el portamuestras y que servía para centrarlo y para que no se moviera de esta posición.
- iv) El arreglo anterior se centro dentro de la cavidad cilíndrica de la fuente del Gammacell, se hicieron marcas para no perder la posición en la cual se colocó

para que en las posteriores irradiaciones se coloque el arreglo en la misma posición para no alterar las condiciones de irradiación.

- v) En la posición anterior se irradiaron las muestras a diferentes tiempos cada vez mayores. Para cada tiempo de irradiación se tomo la lectura TL y se obtuvo la curva de brillo. La plancheta del equipo TL fue calentada desde la temperatura ambiente hasta 400 °C durante 200 s con una razón de calentamiento de 2 °C/s en un atmósfera de N₂. Los datos se replicaron por lo menos 2 lecturas para cada dosis.

Temperatura de irradiación de 77 ° K

Al igual que para la temperatura de irradiación anterior, dosímetros que no habían sido expuestos a radiación gamma, fueron utilizados para irradiar a temperatura de irradiación de 77 K.

El procedimiento para la irradiación fue algo similar para la las muestras irradiadas a temperatura ambiente, solo que en el paso iii), se utilizó Nitrógeno líquido en el vaso de polietileno que contenía el portamuestras hasta estabilizar la temperatura de 77 K dejando lleno el vaso, los mismos tiempos de irradiación utilizados en v) fueron empleados para estas muestras tomando la lectura TL correspondiente. Para tiempos mayores de 30 min se sacaban las muestras de la fuente de radiación cada 35 min para vertir nuevamente Nitrógeno líquido ya que en ese tiempo se evaporaba la mitad de su contenido y a continuación de esto e se metían nuevamente las muestras a la fuente de radiación. Lo anterior es con el fin de que las muestras se mantuvieran irradiando a una temperatura de 77 K.

Para cada dosis después de la irradiación las muestras se dejaron fuera del vaso de polietileno hasta que su temperatura fue estabiliza a la del ambiente para posteriormente tomar la lectura TL.

CAPITULO III

Resultados y discusión

En este capítulo se presentan los resultados obtenidos de las respuestas de las señales termoluminiscentes de los cristales de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ irradiados a temperaturas de 293 y 77 K. También se llevó a cabo un análisis de las respuestas de las señales termoluminiscentes. Los resultados dan información de las características de las curvas de brillo, de la capacidad de medición de la radiación a temperaturas de irradiación menores o iguales a 298 K, así como, la dependencia de la respuesta termoluminiscente con la temperatura de irradiación.

Se consideran dosis bajas a cantidades menores de 24.1 Gy y dosis altas mayores a este valor. La temperatura de irradiación es considerada como la temperatura a la cual se encuentran las muestras al ser irradiadas.

3. 1 Curvas de brillo a temperatura de irradiación de 293 K

La secuencia de las curvas de brillo obtenidas al irradiar los dosímetros de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ a una temperatura de irradiación de 293 K se presenta en la figura 11a para dosis bajas (menores o iguales a 24.09 Gy) y en la figura 11b para dosis altas (mayores a 24.09 Gy). En la figura 11a se alcanza a observar el pico 1 entre un intervalo de temperatura de 75 y 125 °C su crecimiento no es notable, mientras que el pico 2 y 3 tienen un crecimiento bastante notorio. En la figura 11b, se presentan la secuencia de las curvas de brillo para dosis altas, en ella ya no es posible visualizar el pico 1 que se observó a dosis bajas debido a la escala, en esta figura aparece el pico 4 entre temperaturas de 300 y 325 °C que no se observó a dosis bajas, este pico tendió a crecer al aumentar la dosis como se observa en la figura 11b. Los picos 2 y 3 que fueron observados en figura 11a, tendieron a seguir creciendo al aumentar la dosis principalmente el pico 2 y su crecimiento se dio hasta 562.1 Gy. También en esta gráfica se observa que a dosis altas el pico 2 tiene un pequeño corrimiento hacia la izquierda al aumentar la dosis de radiación.

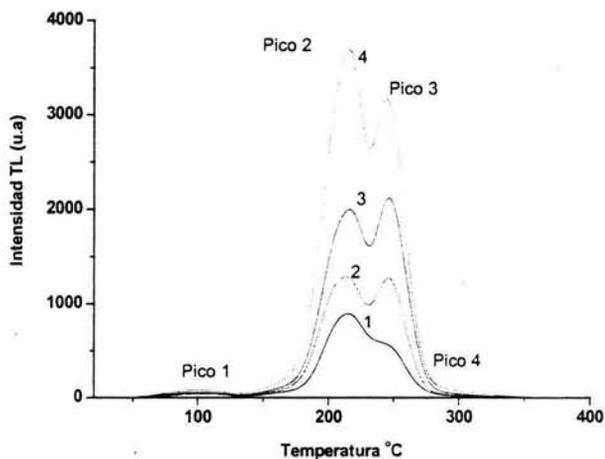


Figura 11a. Curvas de brillo del CaSO₄:Dy, irradiado a temperatura de 293 K a diferentes dosis: 1) 8.03 Gy, 2) 12.04 Gy, 3) 16.06 Gy, 4) 24.09 Gy

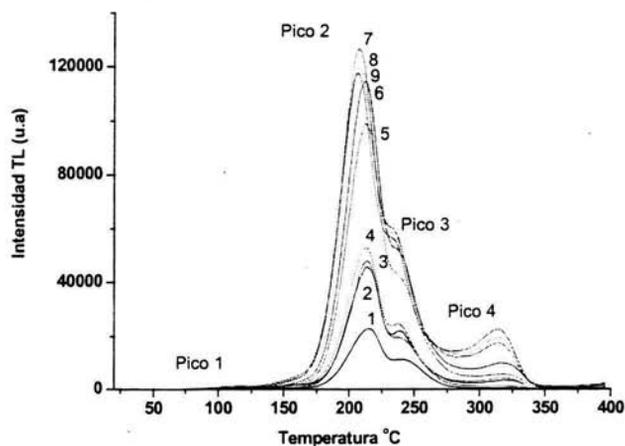


Figura 11b. Curvas de brillo del CaSO₄:Dy, irradiado a temperatura de 293 K para diferentes dosis: 1) 77.08 Gy, 2) 128.48 Gy, 3) 168.63 Gy, 4) 216.81 Gy, 5) 289.08, 6) 401.50 Gy, 7) 562.10 Gy, 8) 642.40 Gy, 9) 722.70 Gy.

3.2 Curvas de brillo a temperaturas de irradiación de 77 K

Para el caso de los resultados de las muestras irradiadas a temperatura de irradiación de 77 K, en la figura 12a se presenta la secuencia de las curvas de brillo de dosis obtenidas a dosis bajas junto con la obtenida a una dosis de 77.08 Gy que corresponde a dosis altas, esta última se agregó con el fin de comparar el cambio significativo que hay entre la dosis de 24.09 y de 77.08 Gy. Se observa que hay una disminución importante del pico 3 cuando se irradia la muestra a una dosis de 77.08 Gy, también se observa en esta gráfica un crecimiento muy notorio del pico 2.

Las secuencias de las curvas de brillo correspondientes a dosis altas obtenidas de estas muestras se presentan en la figura 12b, en esta se observa la evolución de las curvas con la dosis. El pico 1, tanto a dosis bajas, como a dosis altas, esta presente, a diferencia de las curvas de la temperatura de irradiación de 293 K. También se observa un pequeño corrimiento de los picos 1, 2 y 4 hacia la izquierda al aumentar la dosis de radiación.

Es importante mencionar que las curvas de brillo en la figura 12b que corresponden a dosis altas se observan los anchos de los picos menores con respecto a los de temperatura de irradiación de 293 K, la comparación de las curvas de brillo obtenidas para las temperaturas de irradiación utilizadas en los experimento se analizan en la siguiente sección.

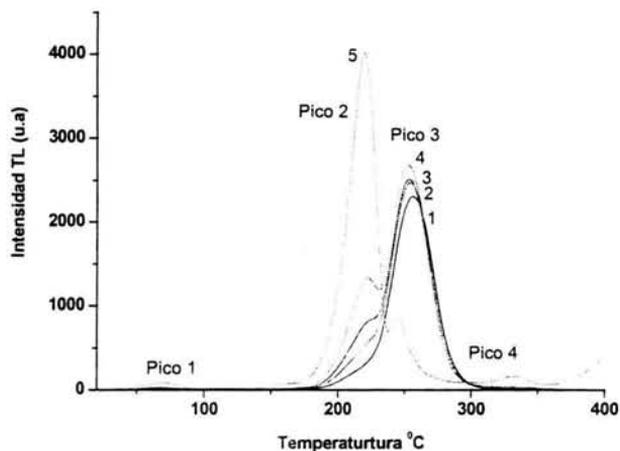


Figura 12a. Curvas de brillo de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, irradiado a temperatura de 77 K: 1) 8.03 Gy, 2) 12.04 Gy, 3) 16.06 Gy, 4) 24.09 Gy, 5) 77.08 Gy.

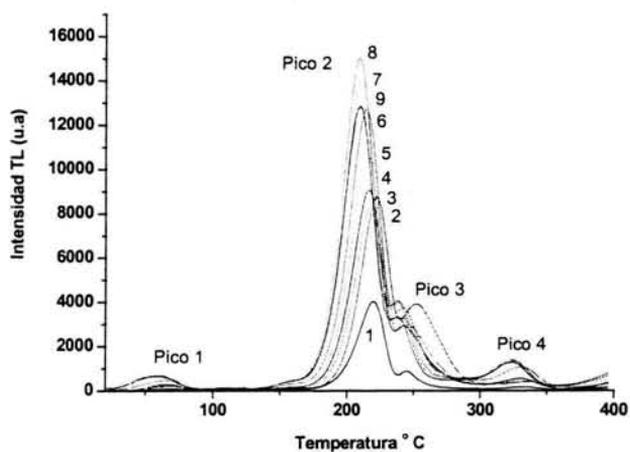


Figura 12b Curvas de brillo de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, irradiado a temperatura de 77 K: 1) 77.08 Gy, 2) 128.48 Gy, 3) 168.63 Gy, 4) 216.81 Gy, 5) 289.08, 6) 401.50 Gy, 7) 562.10 Gy, 8) 642.40 Gy, 9) 722.70 Gy.

3.3 Comparación de las curvas de brillo de las temperaturas de irradiación de 293 y 77 K

En la figura 13 se presentan superpuestas las curvas de brillo para las dos diferentes a temperaturas de irradiación obtenidas ambas a una dosis de 401.5 Gy. En esta figura se puede observar importantes diferencias de los tamaños de las curvas de las dos temperaturas de irradiación utilizadas. Con estas graficas notamos que según el fenómeno de termoluminiscencia, emite mas luz la muestra irradiada a temperatura de 293 K así, hay un mayor daño por radiación sobre la muestra a esta temperatura de irradiación.

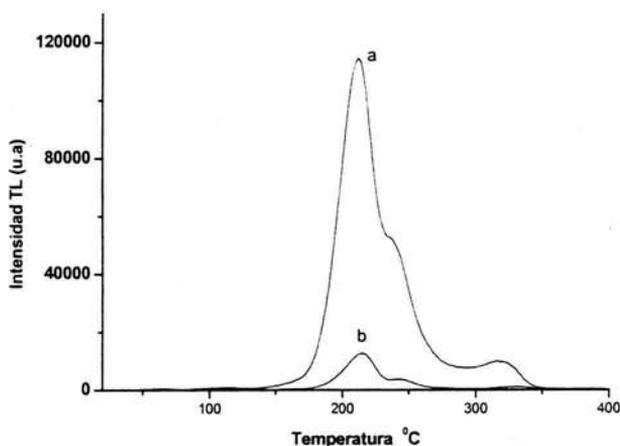


Figura 13. Curvas de brillo del $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ obtenidas temperaturas de irradiación de a) 293 K y b) 77 K, irradiado a una dosis de 401.5 Gy.

Para una mejor comparación las curva de brillo de la figura 14, se presentan nuevamente en la figura 15 con la curva de brillo correspondiente a la temperatura de irradiación de 77 K ampliada en el eje y. En ella se observan de una mejor forma la diferencia de las posiciones y los anchos de los picos de las dos temperaturas de irradiación.

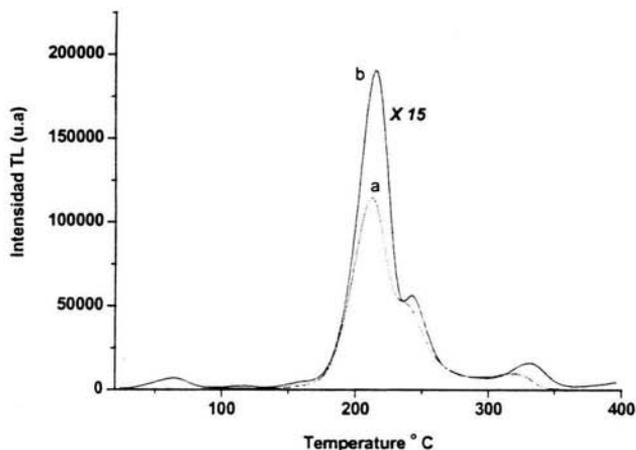


Figura 14. Curvas de brillo obtenidas a una dosis de 401.5 Gy. La curva "a" se obtuvo a una temperatura de irradiación de 293 K y la "b" a 77 K, esta última multiplicada por un factor de 15 en el eje y.

En la Tabla 1 se dan las temperaturas en las que se obtuvo la máxima intensidad TL en las curvas de brillo para las temperaturas de irradiación de 293 y 77 K.

Tabla 1. Temperaturas de los principales picos de las curvas de brillo obtenidas a temperatura de irradiación de 77 y 293 K.

Temperatura (C)	Pico 1	Pico 2	Pico 3	Pico 4
Temperatura de irradiación (K)				
293	90	210	238	323
77	68	216	245	327

En la Tabla 2 se muestran las temperaturas en las que ocurre la máxima intensidad TL de los picos en la curva de brillo por diferentes autores incluyendo los que resultaron de este trabajo, en esta tabla solo aparecen las temperaturas que se aproximan a las obtenidas en este trabajo. Muchos de estos autores no muestran las curvas de brillo en las que se basaron para obtener estas temperaturas.

Las curvas de brillo obtenidas en los experimentos a temperaturas de irradiación de 293 K son diferentes con respecto a las publicadas por algunos autores que se dan en la Tabla 2, sin embargo, como se puede observar en esta tabla el máximo del pico que ocurre a una temperatura aproximada de 210 °C coincide en forma aproximada con los resultados de los demás autores. Las diferencias de las temperaturas de la Tabla 2 se deben al proceso de fabricación del cristal (Azorín, 1990 ; Kása, 1990), al tratamiento térmico, modo de grano, la concentración del material dopante (activador), la razón de calentamiento de la muestra en el equipo TL y según los resultados experimentales de este trabajo a la temperatura de irradiación entre otros.

En la literatura no hay resultados publicados de cristales de CaSO₄:Dy irradiados a temperaturas de 77 K o menores a 293 K por lo que solo se pueden comparar con los publicados a temperatura ambiente..

Tabla 2. Temperaturas de los picos obtenidos con TL para CaSO₄:Dy publicadas por diferentes autores.

Temperatura (°C) Referencia	Pico 1	Pico 2	Pico 3	Pico 3
Este trabajo,	90	210	238	323
McKinlay, 1981	80	220	250	X
Horowitz, 1984	65	210	250	345
Lakshmanan, 1986	X	225	X	375
Souza, 1993	X	222	248	359
Lakshmanan y Tomita, 2002	X	187 -217	X	X
Morgan, 1986	X	220	X	350
McKeever, 1985	70	220	X	X

3.4 Respuesta TL en función de la dosis, a temperatura de irradiación de 293 y 77 K.

La figura 16 muestra las graficas normalizadas de la respuesta total termoluminiscente en función de la dosis (8.03 – 401.5 Gy) para temperaturas de irradiación de 77 y 293 K. Ajustando linealmente las curvas de la figura 16, el coeficiente de correlación obtenido fue de 0.96 a 77 K y 0.99 para 298 K. En el recuadro se presenta la gráfica de la respuesta total termoluminiscente en función de la dosis (8.03 – 722.7 Gy) para las temperaturas de irradiación de 77 y 298 K. La linealidad de las curvas de la figura 16 considerando las dosis utilizadas se estima hasta una dosis de 401.5 Gy. Por ello, según las propiedades de un dosímetro las muestras utilizadas en los experimentos pueden ser empleadas como dosímetros hasta una dosis de 401.5 Gy a temperaturas de irradiación de 77 y 293 K.

En relación al intervalo lineal de estos dosímetros a 293 K de temperatura de irradiación hay varias discrepancias, así, en una gráfica publicada por Mckeever (1985) se observa una linealidad hasta una dosis de 300 Gy de este mismo material, sin embargo el autor asume que la linealidad se conserva hasta 1000 Gy. McKinlay (1981) publica que el intervalo de linealidad esta entre 10^{-6} y 10^3 Gy. Otros autores (Azorín, 1990 ; Morgan 1986) publican que la máxima dosis de radiación que se puede medir con este dosimetro es de 1000 Gy pero no comentan en que se basan y no dan una gráfica como la que se da en la figura 16, solo algunos autores (Horowitz, 1984) comentan que sus estudios se basan en los resultados de Yamashita (1968-1971) en los cuales la máxima dosis que pueden medir este tipo de dosímetros es de 1000 Gy.

Los resultados de la figura 16 nos proporcionan una base sólida para decir el intervalo de linealidad a comparación de otros resultados publicados en los cuales la falta de información nos hace dudar de que tan del intervalo sea confiable. En la figura 16 se observa que la respuesta TL depende fuertemente de la temperatura de irradiación para la muestra utilizada, las pendientes de las gráficas normalizadas de las dos temperaturas de irradiación son diferentes, en el caso de la gráfica de la temperatura de irradiación de 293 K la pendiente de la curva es muy grande comparada con la grafica de la otra temperatura de irradiación, al igual que en el caso de las curvas de brillo de la figura 16 se infiere que el daño por radiación gamma es menor si la temperatura de irradiación disminuye. Por ello, a irradiar materiales a bajas temperaturas la dosimetría debe hacerse en condiciones similares, si no es así, se pueden cometer errores importantes en la medición de la dosis que un material absorbe.

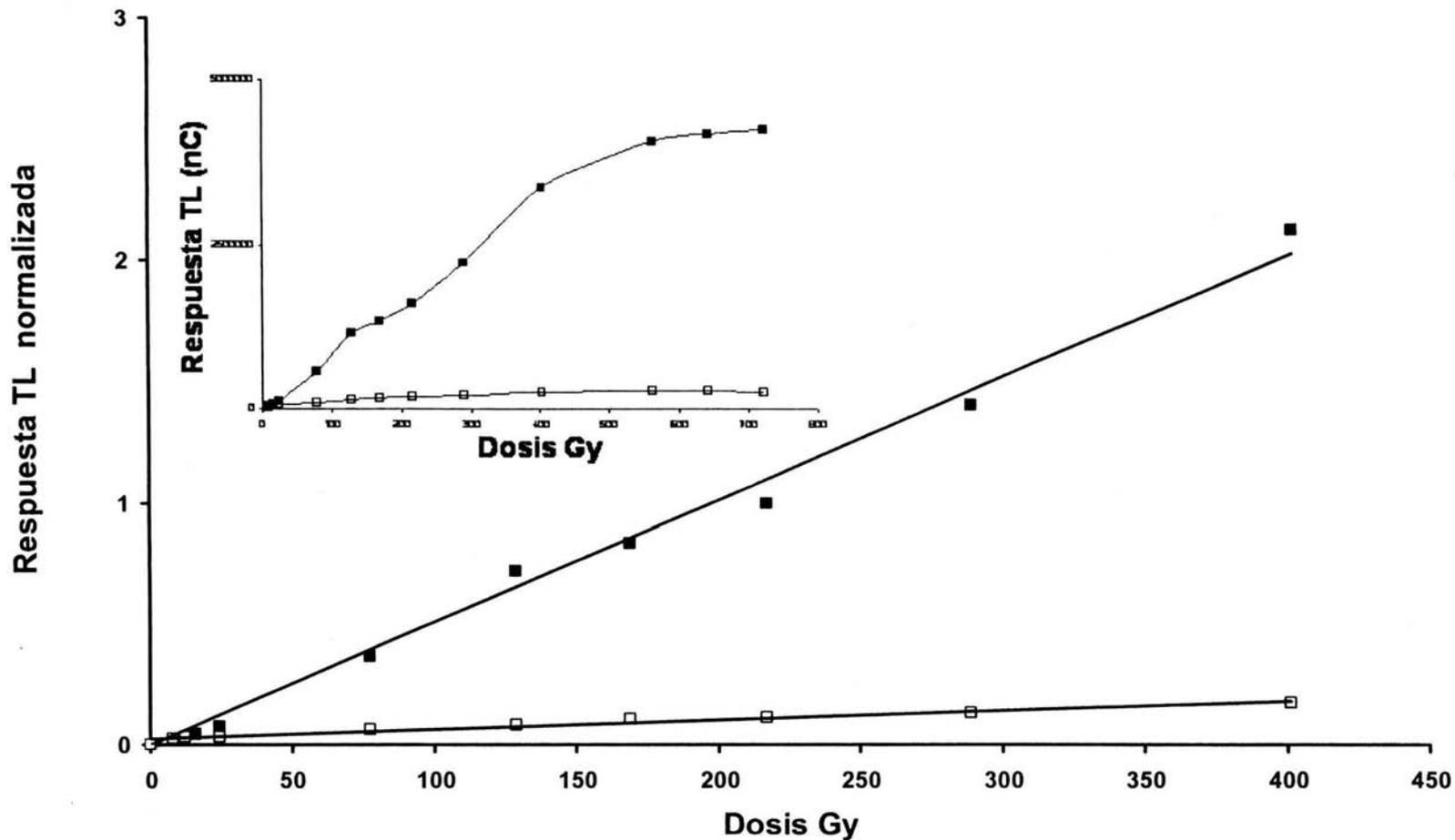


Figura 15. Respuesta TL de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ en función de la dosis (8.03 – 401.5 Gy) irradiado a temperaturas de \square 77 K y \blacksquare 293 K. Los valores se normalizaron respecto a una dosis a temperatura ambiente. El recuadro muestra la respuesta TL en función de la dosis (8.03 – 722.7 Gy).

CAPÍTULO IV

Conclusión

Los resultados experimentales de este trabajo nos han proporcionado información de las propiedades dosimétricas del cristal de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ a temperaturas de irradiación de 293 y 77 K, también se obtuvo información de la influencia de la temperatura de irradiación en la absorción de energía sobre la materia. Las curvas de brillo de las muestras irradiadas a temperatura de 293 y 77 K (figuras 11a, 11b, 12a y 12b) muestran diferencias importantes en la forma de los picos, así, la forma de las curvas de brillo a una misma dosis dependerán de la temperatura a la cual se irradia la muestra. Esto se debe a que al disminuir la temperatura del cristal, la movilidad de las trampas presentes también disminuye, al igual que la velocidad de los electrones generados por la radiación, esto hace que se tengan una menor cantidad de electrones libres interaccionando con las trampas por lo que estas atrapan una menor cantidad de electrones, así, la intensidad de luz emitida en la luminiscencia dependerá de la temperatura de irradiación. En las curvas de brillo se observó que cuando se aumenta la dosis, el pico principal tiene un desplazamiento hacia temperaturas menores, este también tienen simetría, lo anterior nos hace suponer que su comportamiento es de 2º orden cinético (McKeever, 1988). En la curva de brillo de la muestra irradiada a temperatura de 77 K se observó un desplazamiento hacia temperaturas mayores con respecto a las muestras irradiadas a la otra temperatura (figura 14).

En las curvas de brillo obtenidas de las muestras irradiadas a 77 K, se observó con una buena definición el pico 1 (obtenido a una temperatura de 68° C) el cual no se observado a 298 K, este pico podría ser el que aparece a 90° C observado en la figura 11a. En las curvas de brillo publicadas por los autores de la tabla 2 no se observa este pico como en los resultados de este trabajo, estos autores solo proporcionan la temperatura a la cual debe aparecer, así, las curvas de brillo de las figuras 12a y 12b son importantes para el estudio de este pico. De los resultados obtenidos (figura 15) se concluye que la respuesta TL en función de la dosis de radiación depende fuertemente de la temperatura de irradiación. También se observa que la respuesta TL es menor al disminuir la temperatura de irradiación, por tanto, se pueden cometer errores importantes al hacer dosimetría si no se considera la influencia de la temperatura de irradiación en la respuesta TL.

Las muestras utilizadas en los experimentos pueden ser utilizadas como dosímetros a temperaturas de irradiación de 293 y 77 K en un intervalo de dosis de 8.03 a 401.5 Gy.

Sin embargo, las curvas de calibración serán diferentes para cada temperatura de irradiación.

Los resultados de este trabajo serán importantes en otro tipo de estudios en los que esté involucrada la irradiación de materiales a temperaturas bajas como en el caso de experimentos que simulen en el laboratorio cuerpos extraterrestres.

Referencias

1. Abubakar R. y Oberhofer, M. $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ and $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL preparations at Pspkr-batan, Indonesia, and their dosimetric properties. *Radiation Protection Dosimetry*, **33**, 95-98, 1990.
2. Agulló-López, F., López F. L., Jaque, F. *Crystal lattice defects and amorphous materials*. **9**, 227, 1982.
3. Azorín, N. y Gutiérrez, A. Preparation and performance of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, Tm thermoluminescent phosphor for long-term gamma measurements. *Health Physics*, **56**, 551-559, 1989.
4. Azorín, N. *Luminescence dosimetry (Theory and applications)*, Ediciones Técnico Científicas SA de CV, México, 1990.
5. Chandra, B. The role of vacancies in the thermoluminescence of $\text{LiF}:\text{Dy}$. *Radiation Protection Dosimetry*, **17**, 451-454, 1986.
6. Charalambous, S. y Kitis, G. Thermoluminescence of high temperature glow peaks of LiF at various irradiation temperatures. *Radiation Protection Dosimetry*, **33**, 259-262, 1990.
7. Compton, D. W. y Schulman J. *Color center in solids*, Pergamon Press, 2, New York, 1963.
8. Connolly, T. *Fundamentos de ingeniería nuclear*, Limusa, México, 1983.
9. Cruz, E. Efectos de la radiación ionizante en cristales con alto potencial dosimétrico. *Tesis de Maestría*, Facultad de Química, UNAM, 1994.
10. Frenkel, J. On the transformation of light into heat in solids. *Physics Review*. **37**, 1276, 1931.
11. Horowitz, Y. S. *Thermoluminescence and Thermoluminescent dosimetry*. CRC Press, Inc, New York, 1984.
12. Itoh, N. *Crystal Lattice Defects*. **3**, 115, 1972.
13. Jayson, G. y Denaro, A. *Fundamentals of radiation chemistry*, Ann Arbor Science Publishers inc., London, 1972.
14. Kása, I. Dependence of thermoluminescence response of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ and $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ on Grain size and activator concentration. *Radiation Protection Dosimetry*, **47**, 259-262, 1990.
15. Kelly, B. T. *Irradiation Damage to Solids*, Pergamon Press, Oxford, 1966.
16. Kittel, C. *Introducción a la física del estado sólido*, Reverté, Barcelona, 1993.
17. Las, W. L. Mechanisms for thermoluminescence in MgO and CaSO_4 . *Nuclear instruments and Methods*, **175**, 1-3, 1980.

18. López, F. J., Cabrera, J. M, Agulló – López F. Radiation-induced colouring in NaCl:Mn²⁺. *Journal Physics*, **12**, 1221, 1979.
19. Mahesh, K. Weng, PS. Furreta, C. *Thermoluminescence in solids and its applications*, Nuclear Technology Publishing, New York, 1989.
20. McKeever, S. W. S. *Thermoluminescence of solids*, Cambridge University Press, New York, 1988.
21. McKinlay, A. F. *Thermoluminescence dosimetry*, IOP Publishing, London, 1981.
22. Morgan, M. D. y Stoebe, T. G. Thermoluminescent mechanisms in CaSO₄. *Radiation Protection Dosimetry*, **17**, 455-458, 1986. ya
23. Mott, N. F. On the colour centres in alkali halide crystal. *Trans. Faraday Soc.* **34**, 500, 1938.
24. Pascual, J., Agulló, F. *Crystal lattice defects and amorphous materials*. **7**, 161, 1977.
25. Pert, C. A. y Robb, T. *Física de los sólidos*, McGraw-Hill, Madrid, p. 56-66, 1964.
26. Pooley, D. F-center production in alkali halides by electron-hole recombination and a subsequent (II0) replacement sequence: a discussion of the electron-hole recombination. *Proc. Phys. Soc.* **87**, 245-257, 1966.
27. Pooley, D. y Hughes, A. *Real Solids an Radiation*, Wykeham Pulications Lts., London, 1975.
28. Schwartz, K. *Excitons and radiation damage in Alkali Halides*. RAU Scientific reports and solid state electronic and technologies, **1**, 3-14, 1996.
29. Sibley, W. A., Sonder, E. *Point Defect in solids*, Ed. J. H. Crawford Plenum Press, New York, 1972.
30. Souza, J. H. On the thermoluminescence glow curve of Ca SO₄:Dy. *Radiation Protection Dosimetry*, **47**, 103-106, 1993.
31. Strumane, R., Nihoul, J., Amelincx, K. *The interaction of radiation with Solids*, Noth –Holland, Amster-dam, 1964.
32. Thompson, N. W. *Defects and Radiation Damage in Metals*. Cambridge Univesity Press, New York, 1969.
33. Townsend, P., Kelly J. *Colour Centres and Imperfections in insulators and Semiconductors*, Sussex University Press, New York, 1973.
34. Wannier, G. H. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals. *Physics Review*, **52**, 191, 1937.

Lista de figuras

Figura 1. Procesos de transferencia de energía por radiación.

Figura 2. Esquema de las bandas de energía mostrando la presencia de estados metaestables en la banda prohibida.

Figura 3. Esquema del modelo de bandas de energía en el que un fotón interacciona con electrones de la banda de valencia y adquieren energía suficiente para pasar a la banda de conducción, este electrón deja en su lugar un hueco con carga opuesta a él.

Figura 4. (a) Hueco auto atrapado (centro V_k) y electrón libre después de la radiación.
(b) Disociación de un excitón autoatrapado
(c) Centro H

Figura 5. Relación entre absorción de radiación y la emisión de fluorescencia, fosforescencia y termoluminiscencia, T_0 es la temperatura a la cual toma lugar la irradiación; β es la razón de calentamiento; t_r es el tiempo al cual la radiación finaliza y el decaimiento de fosforescencia empieza

Figura 6. Modelo de estados de energía para transiciones de energía en la producción de (a) fluorescencia y (b) fosforescencia

Figura 7. Modelo simple de las bandas de energía para termoluminiscencia.

Figura 8. Picos termoluminiscentes de primer (I) y segundo (II) orden. (McKeever, 1988)

Figura 9. Representación gráfica de la respuesta termoluminiscente en función de la dosis absorbida, mostrando las regiones lineal, supralineal y sublineal.

Figura 10. Diagrama de bloques del equipo termoluminiscente.

Figura 11a. Curvas de brillo del $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, irradiado a temperatura de 293 K a diferentes dosis: 1) 8.03 Gy, 2) 12.04 Gy, 3) 16.06 Gy, 4) 24.09 Gy

Figura 11b. Curvas de brillo del $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, irradiado a temperatura de 293 K para diferentes dosis: 1) 77.08 Gy, 2) 128.48 Gy, 3) 168.63 Gy, 4) 216.81 Gy, 5) 289.08, 6) 401.50 Gy, 7) 562.10 Gy, 8) 642.40 Gy, 9) 722.70 Gy.

Figura 12a. Curvas de brillo de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, irradiado a temperatura de 77 K: 1) 8.03 Gy, 2) 12.04 Gy, 3) 16.06 Gy, 4) 24.09 Gy, 5) 77.08 Gy.

Figura 12b Curvas de brillo de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, irradiado a temperatura de 77 K: 1) 77.08 Gy, 2) 128.48 Gy, 3) 168.63 Gy, 4) 216.81 Gy, 5) 289.08, 6) 401.50 Gy, 7) 562.10 Gy, 8) 642.40 Gy, 9) 722.70 Gy.

Figura 13. Curvas de brillo del $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ obtenidas a temperaturas de irradiación de a) 293 K y b) 77 K, irradiado a una dosis de 401.5 Gy.

Figura 14. Curvas de brillo obtenidas a una dosis de 401.5 Gy. La curva "a" se obtuvo a una temperatura de irradiación de 293 K y la "b" a 77 K, esta última multiplicada por un factor de 15 en el eje y.

Figura 15. Respuesta TL de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ en función de la dosis (8.03 – 401.5 Gy) irradiado a temperaturas de 77 K y 293 K. Los valores se normalizaron respecto a una dosis a temperatura ambiente. El recuadro muestra la respuesta TL en función de la dosis (8.03 – 722.7 Gy).