



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE
MÉXICO

**PROGRAMA DE MAESTRÍA Y DOCTORADO EN CIENCIAS
QUÍMICAS**

**Estudio de cristales de halogenuros alcalinos dopados con cationes divalentes
ante radiación gamma**

TESIS
PARA OPTAR POR EL GRADO DE
DOCTOR EN CIENCIAS

PRESENTA

M. en C. Alejandro Ortiz Morales



TUTOR: Dra. Alicia Negrón Mendoza

2009



Universidad Nacional
Autónoma de México



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.

Agradecimientos

El autor desea expresar su más sincero agradecimiento a los Doctores:

María Isabel Gamboa de Buen, Epifanio Cruz Zaragoza y José Ignacio Jiménez Mier y Terán, por su colaboración en la revisión y redacción de este trabajo.

Además, manifiesta su agradecimiento especial al Dr. Claudio Furetta, cuya familiaridad con las necesidades e ideas de este trabajo resultó de enorme utilidad durante el desarrollo de esta tesis.

Al jurado del examen doctoral:

- Dr. José Ignacio Jiménez Mier y Terán (ICN-UNAM),
- Dr. Manuel Navarrete Tejero (FQ-UNAM),
- Dra. María Isabel Gamboa de Buen (ICN-UNAM),
- Dr. Oscar Gerardo Loaiza Brito (CINVESTAV-Monterrey),
- Dr. Jorge Peón Peralta (IQ-UNAM),
- Dr. Epifanio Cruz Zaragoza (ICN-UNAM),
- Dr. Ernesto Rivera García (IIM-UNAM).

Por sus valiosos comentarios y haber aceptado ser parte de mi jurado.

A los Doctores:

- George Kitis, del Nuclear Physics Laboratory, Aristotle University of Thessaliniki, por el apoyo en el cálculo y desarrollo numérico de los resultados experimentales.
- Pedro Ramón González Martínez del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares por el apoyo en la irradiación de los sólidos con fotones de rayos X, ^{137}Cs y ^{60}Co además por el apoyo en el cálculo y tratamiento numérico de los resultados experimentales.
- José Luís Gómez Muñoz del ITESM-CEM por su asesoría en el desarrollo en los programas de cómputo.

A los miembros del comité del examen tutorial ampliado:

- Dr. Claudio Furetta Tauro University Rome, Italy. Division of Tauro College New York
- Dra. María Isabel Gamboa de Buen (ICN-UNAM)

Gracias también a todos los integrantes del comité tutorial:

- Dr. Manuel Navarrete Tejero (FQ-UNAM),
- Dr. Jorge Peón Peralta (IQ-UNAM),
- Dra. Alicia Negrón Mendoza (ICN-UNAM),

por sus contribuciones y comentarios.

A los Maestros en Ciencia:

Benjamín Leal Acevedo y Marcelo Ixquiac Cabrera por sus importantes comentarios de este trabajo.

Al Físico Francisco García Flores por el apoyo durante las irradiaciones de las muestras

Al Sr. Francisco Isidoro Pacheco por el apoyo en el Laboratorio y manejo de las muestras

Al ICN-UNAM por el uso y manejo de instalaciones y espacios físicos.

Al ININ por el apoyo en las irradiaciones a diferentes energías

Al CONACyT con número de proyecto 191593 por la beca otorgada durante los estudios de doctorado.

A la Dirección general de estudios de Postgrado por la beca otorgada durante los estudios de doctorado.

A Rosa María y Octavio Ortiz Vélez por apoyo y cariño y a mis queridos sobrinos

A Elizabeth Jasso Sandoval por su inigualable apoyo y soporte a mi trabajo.

	Pág.
Abstract	
Resumen	
Introducción.....	1
Capítulo 1	
Conceptos generales	
1.1 Defectos.....	11
1.1.1 Defectos de Schottky.....	11
1.1.2 Par Frenkel.....	11
1.1.3 Defectos sustitucionales.....	11
1.2 Radiación ionizante.....	14
1.2.1 Fotones gamma.....	14
1.2.2 Rayos X.....	14
1.2.2.1 Producción de rayos X.....	16
1.2.2.2 Espectro continuo.....	17
1.2.2.3 Espectro característico.....	18
1.3 Interacción de la radiación ionizante con la materia.....	19
1.3.1 Dispersión Compton.....	21
1.3.2 Absorción fotoeléctrica.....	23
1.3.3 Producción de pares.....	24
1.3.4 Coeficientes másicos de atenuación, de transferencia de energía y de absorción de energía	25
1.3.4.1 Coeficiente másico de transferencia de energía.....	26
1.3.4.2 Coeficiente másico de absorción de energía.....	26
1.4 Luminiscencia.....	27
1.4.1 Fluorescencia	29
1.4.2 Fosforescencia.....	29
1.5 Termoluminiscencia	30
1.6 Parámetros cinéticos.....	33
1.6.1 Energía de activación.....	33
1.6.2 Factor de frecuencia.....	34
1.7 Modelos de cinética	
1.7.1 Cinética de primer orden (Randall y Wilkins).....	35
1.7.2 Cinética de segundo orden (Garlick y Gibson)	37
1.7.3 Cinética de orden general (May y Partridge)	39
1.8 Efecto de la temperatura de irradiación sobre la respuesta TL	41
1.9 Reproducibilidad de los sistemas termoluminiscentes.....	42
1.10 Desvanecimiento de la señal TL.....	43
1.11 Respuesta TL como función de la dosis linealidad y no-linealidad e índices $f(D)$ y $g(D)$	46
1.12 Respuesta relativa como función de la energía.....	51

1.13	Métodos para evaluar los parámetros cinéticos	53
1.13.1	Deconvolución.....	54
	Función para una cinética de primer orden.....	54
	Función para una cinética de segundo orden.....	54
	Función para una cinética de orden general.....	54
1.13.2	Método del levantamiento inicial.....	56
1.13.3	Método de la forma del pico y ecuación de Chen.....	57
1.14	Características de picos de brillo de primer y segundo orden.....	60
1.15	Modelo de Boer para el centro F.....	62
1.16	Concentración de centros F y ecuación de Smakula.....	64
1.16.1	Curvas de coloración	64

Capítulo 2

Desarrollo Experimental

2.1	Crecimiento de cristales.....	66
2.2	Dosimetría utilizada y fuentes de irradiación.....	67
2.2.1	Dosímetro de Fricke.....	67
2.2.1.1	Gammabeam 651 PT.....	68
2.2.1.2	Gammacell 200.....	69
2.2.1.3	Capas hemirreductoras(CHR).....	71
2.2.1.4	Rayos X.....	71
2.3	Tratamientos térmicos	72
2.4	Instrumentación	
2.4.1	Lector TL	73
2.4.2	Espectrofotómetro UV-vis.....	73

Capítulo 3

Resultados y discusión

Temperatura de irradiación de 300 K

3.1	Curvas de brillo como función de la dosis.....	78
3.1.1	Efecto de la dosis sobre las curvas de brillo con diferentes concentraciones de iones impureza.....	80
3.1.2	Breve discusión de los posibles mecanismos responsables de la formación de las curvas de brillo a una temperatura de irradiación de 300 K.....	81
3.2	Reproducibilidad de los sistemas termoluminiscentes.....	83
3.3	Medida del desvanecimiento de la señal TL	
	como función del tiempo.....	85
3.3.1	Curvas de brillo a diferentes tiempos de almacenamiento.....	86
3.3.2	Respuesta TL como función del tiempo.....	88
3.3.3	Cálculo de la energía de activación durante el periodo de desvanecimiento de la señal TL a partir de la deconvolución de las curvas de brillo.....	89
3.3.4	Modelo teórico del desvanecimiento de la señal TL como función del tiempo y parámetros de desvanecimiento.....	89

3.4	Respuesta TL como función de la dosis absorbida.....	90
3.5	Análisis de linealidad y no-linealidad e índices $f(D)$ y $g(D)$	93
3.6	Respuesta relativa como función de la energía.....	95
3.7	Métodos para evaluar los parámetros cinéticos	
3.7.1	Deconvolución.....	96
3.7.2	Método del levantamiento inicial.....	100
3.7.3	Método de la forma del pico y ecuación de Chen	101
3.8	Efecto de la temperatura de irradiación en la respuesta TL.....	103
	Temperatura de irradiación de 263 K	
3.8.1	Curvas de brillo como función de la dosis.....	105
3.8.1.1	Deconvolución y parámetros cinéticos.....	107
	Temperatura de irradiación de 200 K	
3.8.2	Curvas de brillo como función de la dosis.....	109
3.8.2.1	Respuesta TL como función de la dosis.....	110
3.8.2.2	Análisis de linealidad y no-linealidad.....	111
3.8.2.3	Deconvolución y parámetros cinéticos.....	113
	Temperatura de irradiación de 77 K	
3.8.3	Curvas de brillo como función de la dosis.....	114
3.8.3.1	Respuesta TL como función de la dosis	115
3.8.3.2	Análisis de linealidad y no-linealidad.....	116
3.8.3.3	Deconvolución y parámetros cinéticos.....	118
3.8.3.4	Breve discusión de los posibles mecanismos responsables de la formación de las curvas de brillo a bajas temperaturas de irradiación.....	119
3.9	Análisis de la respuesta TL como función de la temperatura de irradiación	120
3.9.1	Curvas intensidad TL como función de la temperatura de irradiación.....	121
3.10	Banda de absorción F, modelo de Boer y curvas de coloración.....	123
3.10.1	Banda de absorción F como función de la dosis.....	124
3.10.2	Modelo de Boer.....	125
3.10.3	Curvas de coloración.....	127
	Conclusiones.....	129
	Referencias.....	134
	Apéndice A	
	Magnitudes y unidades radiológicas.....	138
	Apéndice B	
	Deducción de las ecuaciones de Kitis a partir de los modelos de Randall y Wilkins, Garlick y Gibson y May y Partridge.....	141
	Apéndice C	
	Solución analítica de la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo para un pozo de potencial cuadrado.....	146

Abstract

In the present thesis we will research the effect of ionizing radiation on the crystals $NaCl : XCl_2 : MnCl_2 (X = Ca, Cd)$ at two different concentrations. The crystals samples were exposed to gamma rays of ^{60}Co and X-rays. The thermoluminescent properties was investigated by TL phenomena and also the optical measurements was done by optical spectroscopy. The results are related to the: fading measure of the signal TL, kinetics parameters, reponse as a function of energy, thermoluminescence signal reproducibility, thermoluminescence signal at low irradiation temperature and thermoluminescence response as function of dose this last was analyzed using the $f(D)$ and $g(D)$ indexes and finally the F centers production as a function of the dose rate also was calculated.

The irradiation temperatures examined were: 77, 200, 263 y 300 K and the glow curves showed changes in structure this indicate a possible change kinetic order. Coloration curves were obtained at different dose rates (0.563, 2.405, 4.153 kGy/h), and only it was found at the two first stages of the coloration curves. The absorption spectrum shows a maximum peak around 460 nm, which is characteristic of F centres [1]. Correlation of optical and thermoluminescent properties help to discuss the association of F-centres with the glow curve and contributes with the identification of the principal pair-defect i.e. electron-anionic vacancy produced by irradiation [2]. These defects are associated with the appearance of the main peak of the glow curve (dosimetric peak).

Resumen

En esta tesis se investiga el efecto de la radiación ionizante sobre los cristales de $NaCl : XCl_2 : MnCl_2$ ($X = Ca, Cd$) en dos diferentes concentraciones. Las preparaciones fueron expuestas a rayos gamma de ^{60}Co y rayos X de baja energía. Las propiedades TL se investigaron mediante termoluminiscencia y la concentración de centros F como función de la tasa de dosis con espectroscopia óptica. Los resultados están relacionados con la medida del desvanecimiento de la señal termoluminiscente como función del tiempo, parámetros cinéticos, respuesta TL como función de la energía, reproducibilidad de la señal termoluminiscente, intensidad termoluminiscente a bajas temperaturas de irradiación, respuesta TL como función de la dosis absorbida, este comportamiento fue analizado utilizando los índices $f(D)$ y $g(D)$. Finalmente se determinó la concentración de los centros F como función de la tasa de dosis. Las temperaturas de irradiación en que se analizó la respuesta TL fueron de 77, 200, 263 y 300 K encontrándose que las curvas de brillo modificaron su estructura lo que indica un cambio en el orden de la cinética con respecto a la irradiación a temperatura ambiente. Las curvas de coloración fueron obtenidas a las tasas de dosis (0.563, 2.405 y 4.153 kGy/h) mostrando un cambio en la producción de defectos (en particular los centros F) exhibiendo sólo las dos primeras etapas de coloración. A partir de los espectros de absorción experimentales se encontró que la banda de absorción F se encuentra alrededor de 460 nm [1]. La correlación entre las propiedades ópticas y termoluminiscentes ayudará a elucidar la asociación de los centros F con los mecanismos responsables que generan las curvas de brillo además de contribuir con la identificación del principal par-defecto i.e. electrón-vacancia aniónica producido por la irradiación [2]. Estos defectos están asociados con la aparición del pico principal de la curva de brillo (pico dosimétrico).

Introducción

La especie humana siempre ha sido expuesta a radiación. Las radiaciones se originan en el sol y el espacio exterior; en materiales radiactivos presentes en la corteza terrestre y de construcción, e incluso en el agua que consumimos a diario. En adición a estas radiaciones naturales el hombre en las últimas décadas ha creado otras fuentes de radiación tales como fuentes de rayos X, y de partículas cargadas (electrones, protones etc.) que son usadas con propósitos de diagnóstico y terapéuticos. Algunos radioisótopos tales como el ^{60}Co y ^{137}Cs , ^{99}Tm son utilizados en procedimientos médicos para evaluar la condición y función de varios órganos del cuerpo tales como corazón, pulmones, cerebro, hígado y riñones. La medición de la radiación ionizante y no ionizante ha llegado a ser un área de la ciencia muy importante, es por ello que la estimación de los riesgos y beneficios inherente a sus usos está en continuo estudio y análisis [3].

Las áreas más comunes en el uso de las radiaciones son las siguientes:

1. Radioecología: Donde se utilizan dosis del orden de $10^{-2} \mu\text{Gy}$ [3].
2. Dosimetría personal: Donde se utilizan dosis del orden de 10^{-5}Gy a fracciones de Gy y se necesita una precisión del 10 a 20% [3].
3. Radioterapia y radiobiología experimental: Donde se utilizan dosis del orden de 10^{-3} a 10^2Gy , con una precisión del 2 a 5% [3].
4. Esterilización de alimentos, evaluación de materiales, reactores nucleares y procesos industriales las dosis están entre 10^3 a 10^7Gy [3].

El constante estudio del efecto de la radiación ionizante se inicia con los análisis radiobiológicos hasta ensayos nucleares esto genera la necesidad de la producción de dosímetros capaces de medir desde las dosis más bajas absorbidas i.e. $\sim \mu Gy$ hasta MGy . En años anteriores existía la duda que si la probabilidad de formación de células cancerosas se incrementaba linealmente con la dosis a muy bajos valores de dosis absorbida y si esto se había producido primordialmente en personas que vivían cerca de plantas nucleares en operación o por ensayos nucleares [3].

Esta pregunta solo enfatizaba la necesidad para continuar con el desarrollo de dosímetros capaces de medir dosis extremadamente bajas de $10\mu Gy$ o incluso menores. De aquí surge la necesidad de buscar una técnica dosimétrica eficaz en la medición de la radiación ionizante y a partir de esto se utiliza la dosimetría termoluminiscente (DTL) que es útil y ampliamente utilizada en la medición de la radiación ionizante, ya que esta utiliza mono y poli cristales dopados los cuales son expuestos a radiación ionizante y posteriormente son calentados, produciendo la señal TL que es una medida de la energía de la dosis absorbida.

Actualmente se continua con la producción e investigación de dosímetros termoluminiscentes (DTL) capaces de medir dosis del orden de μGy o menores, esto será de gran beneficio para lograr monitorear la radiación ambiental y personal en prolongados periodos para obtener información precisa. A continuación se define el concepto de dosímetro y algunas de las características más generales de los dosímetros.

Dosímetro

Un dosímetro se define como un dispositivo que es capaz de proveer una lectura r que es una cantidad de la dosis absorbida D_g depositada en un volumen sensible V por radiación ionizante. Si la dosis no es homogénea a través del volumen sensible, entonces r es una medida del valor promedio de la dosis \overline{D}_g . Idealmente r es proporcional a D_g , y cada elemento de volumen de V tiene igual contribución sobre el valor de r , en tal caso \overline{D}_g es el promedio de la dosis a través de V [4].

Algunas características de los dosímetros TL

1. Respuesta TL como función de la dosis,
2. Respuesta relativa como función de la energía,
3. Reproducibilidad de un sistema termoluminiscente
4. Desvanecimiento de la señal TL,
5. Pico principal de brillo (dosimétrico),
6. Estabilidad química,
7. Forma física,
8. Toxicidad.

1.-Respuesta TL como función de la dosis.

Para que un dosímetro sea útil, debe tener una adecuada sensibilidad $(dr / d\overline{D}_g)$ en el intervalo de dosis que sea medido. Una sensibilidad que es constante en todo el intervalo de dosis provee una respuesta lineal (i.e. respuesta TL como función de la dosis) y sirve para facilitar la calibración e interpretación de las mediciones. Si la función $r(\overline{D}_g)$ al ser evaluada no es lineal, puede ser aceptada calculando los factores de calibración adecuados [4].

a) Lecturas de fondo, dosis umbral y máxima

La dosis de umbral puede ser establecida a partir del valor del fondo del instrumento de lectura, o lectura a una dosis $D = 0$. Este es el valor de $r = r_0$ medido cuando $\overline{D}_g = 0$ y es conocido como respuesta de fondo, ya que no es producida por radiación. El valor de la dosis máxima medida por un dosímetro puede ser establecida por las limitaciones instrumentales externas, tales como las lecturas fuera de escala en el intervalo de sensibilidad del lector TL, alternativamente algún tipo de límite inherente puede ser impuesto por el propio dosímetro [4].

2.- Respuesta relativa como función de la energía.

Es la intensidad TL emitida por sólido cristalino irradiado y es proporcional a la energía absorbida por el dosímetro [4].

3.-Reproducibilidad de un sistema termoluminiscente

El concepto de precisión o reproducibilidad puede ser estimada de los datos obtenidos en repetidas mediciones, y es usualmente establecida en términos de la desviación estándar, una alta precisión es asociada con una pequeña desviación estándar. Del mismo modo la precisión del valor promedio de un conjunto de medidas repetidas expresa la probabilidad de concordancia con el valor esperado para un gran número de medidas y si su valor promedio coincide con el valor de esperado [4].

4.-Desvanecimiento de la señal TL

Después de la exposición de un dosímetro TL a la radiación ionizante la medida permanente de la dosis absorbida es el número de portadores de carga (huecos o electrones) los cuales permanecen atrapados en varios niveles de atrapamiento. La liberación no intencional de los portadores de carga antes de la lectura es conocida como desvanecimiento. El desvanecimiento puede ser debido a la liberación estimulada óptica o térmica de portadores de carga o una combinación de ambas. El desvanecimiento óptico se produce por la exposición de dosímetros a radiación UV, en una muestra no irradiada puede causar señales TL espurias [5].

5.- Pico principal de brillo (pico dosimétrico)

El pico dosimétrico es el pico mejor definido en la curva de brillo, i.e. que no presenta hombros ni picos satélites además de tener la mayor intensidad TL y una buena estabilidad i.e. casi no es afectado por el desvanecimiento TL. Estas características permiten una determinación precisa de la dosis absorbida [5].

6.- Estabilidad química

El almacenamiento de los materiales TL en lugares con humedades relativas mayores a 30% producen una pérdida significativa de la sensibilidad TL en muestras irradiadas y una posible destrucción de centros luminiscentes como resultados de la difusión térmica de en la red de iones de oxígeno o moléculas de agua . La pérdida de sensibilidad se incrementa con la humedad relativa y la temperatura [5].

7.-Forma física

En cristales sólidos, pastillas y en polvos comprimidos [5].

8.- Toxicidad

Los posibles efectos tóxicos de los materiales TL son importantes desde los siguientes puntos de vista:

- a) Si un material es muy tóxico se deben tomar técnicas de manejo especial para su uso y esto deberá ser considerado como una desventaja del material
- b) Si un material es implantado en el tejido es importante que el paciente no sufra daños por su contacto con el material.
- c) Los posibles efectos dañinos sólo se deberán presentar con una ingestión accidental (contaminación de comida o bebidas) o la entrada de partículas en el torrente sanguíneo (vía piel o en una herida) o la entrada de partículas en los pulmones (por la inhalación de polvo) [5].

Así un buen dosímetro TL es el que tiene el mayor número de las propiedades descritas anteriormente. En los últimos años se han investigado las propiedades termoluminiscentes de $\text{BaSO}_4\text{:Dy}$ [6], $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ [7] para posibles aplicaciones en dosimetría TL. Un dosímetro termoluminiscente (DTL) ampliamente utilizado y estudiado es el TLD-100 (LiF:Mg:Ti) [8] por sus características dosimétricas i.e. reproducibilidad de la señal, linealidad, respuesta relativa a la energía, etc.

Un monocristal también estudiado es el NaCl:XCl_2 , dopado con $(\text{X}=\text{Eu,Cu})$ [9][10] por sus propiedades TL i.e. sensibilidad, reproducibilidad de la señal TL, linealidad, etc. Tanto el TLD-100 como el NaCl impurificado son cristales halogenuros alcalinos, la diferencia entre ellos es el número de dopantes y su concentración [ppm], por ejemplo el NaCl:Eu y el TLD-100 presentan una banda de emisión cerca de 420 nm, además de que el proceso responsable de las curvas de brillo a 300 K es la recombinación (cinética de primer orden) para ambos. Por tanto si el NaCl impurificado tiene características similares a las exhibidas por el TLD-100, el $\text{NaCl:XCl}_2\text{:MnCl}_2$ ($\text{X}=\text{Ca,Cd}$) en dos diferentes concentraciones probablemente tenga propiedades dosimétricas, por ejemplo el número atómico efectivo del TLD-100 ($Z_{eff} \sim 8.2$) es equivalente a tejido blando ($Z_{eff} \sim 7.4$)[11] mientras que el Z_{eff} de las nuevas preparaciones está entre 15.71 y 17.37 que es equivalente a los huesos duros ($Z_{eff} \sim 14.3$)[5][12][13]. Esta característica y las mencionadas anteriormente exhortan la investigación de las propiedades TL de esta nueva preparación de NaCl en dos diferentes concentraciones.

En el capítulo 1 de este trabajo se definen algunos de los defectos estructurales más generales en los sólidos, los principales tipos de la interacción de la radiación con la materia además de los conceptos de luminiscencia, fluorescencia y fosforescencia, para finalmente definir el fenómeno de termoluminiscencia. Los modelos cinéticos utilizados son los propuestos por: Randall y Wilkins (primer orden), Garlick y Gibson (segundo orden) y May y Partridge (orden general) [14], además se describirán algunos de los procesos responsables en la respuesta termoluminiscente como función de la temperatura de irradiación.

Se establecerán las características generales de los métodos de deconvolución, levantamiento inicial y forma del pico para calcular los valores de los parámetros cinéticos así como los conceptos de respuesta relativa como función de la energía, índices de supralinealidad y superlinealidad además de algunas relaciones útiles que describen el fenómeno del desvanecimiento termoluminiscente. Por último se analizará el modelo de Boer (pozo cuántico) que es resuelto con la ecuación de Schrödinger, el cual hace una analogía con el centro F (electrón atrapado en una vacancia aniónica) para calcular las energías más probables de este defecto.

En el capítulo 2 se describe el método de crecimiento de los cristales, el procedimiento de preparación del dosímetro químico de Fricke para medir las tasas de dosis en el irradiador Gammabeam 651PT y la dosis en el Gammacell 200, y la descripción experimental de la irradiación de los cristales con fotones de rayos X con energías (16, 24, 35, 42, 100 y 145 keV) y fotones de rayos gamma emitidos por una fuente de ^{137}Cs (0.662 MeV) y los tratamientos térmicos realizados a las preparaciones antes de ser irradiadas.

En el capítulo 3 se presentan los resultados experimentales obtenidos de la termoluminiscencia y algunas medidas de espectroscopia óptica, y posteriormente se emiten comentarios sobre estos, y finalmente se presentan las conclusiones de esta tesis.

Este manuscrito incluye los apéndices A, B y C el primero se refiere a las unidades y magnitudes radiológicas que se mencionan a lo largo de este trabajo, el segundo presenta un desarrollo de 3 ecuaciones que describen los procesos cinéticos de la termoluminiscencia, y el último el modelo de Boer.

Capítulo 1

Conceptos generales

La estructura de los sólidos cristalinos puede describirse en función de una red, con un grupo de átomos ligados a cada punto de la misma. El grupo de átomos se denomina base, y éstos están separados ciertas distancias del orden de radios atómicos, y cualquier tipo de alteración de la red representa un defecto. En cristales halogenuros alcalinos, del tipo M^+X^- cada catión (iones alcalinos) está rodeado por seis aniones (iones de halógeno) y cada anión por seis cationes. Los cationes y aniones están situados sobre los puntos de separación de redes cúbicas centradas en la cara [15]. La figura 1.1 exhibe la estructura cristalina (ccc) cúbica centrada en la cara característica del NaCl.

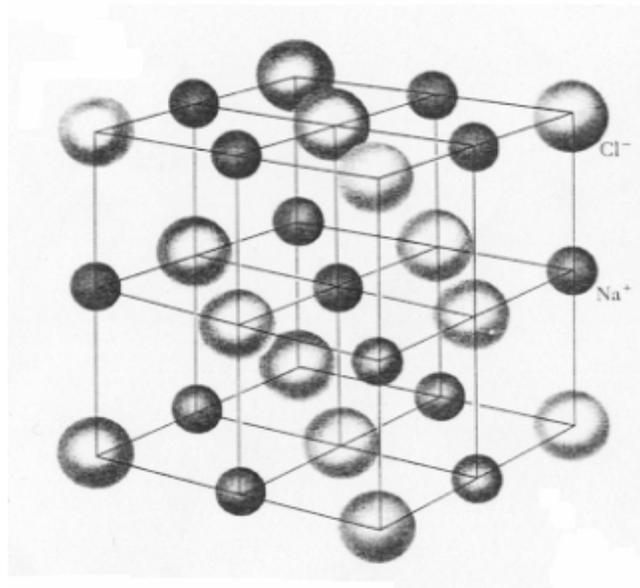


Figura 1.1 Estructura cristalina del cloruro de sodio [15].

1.1 Defectos

Durante el crecimiento de un cristal por contaminación natural y/o intencional, se forman imperfecciones en la red de un sólido cristalino, o por la irradiación de los estos con rayos γ o X. Así un cristal contiene defectos los cuales son generalmente de tres tipos:

1.1.1) Vacancias o átomos impureza (defectos de Schottky): una vacancia es un defecto producido cuando un átomo es extraído de su sitio de red y no es reemplazado.

1.1.2) Intersticial o defecto de Frenkel: éste consiste de cualquier átomo insertado en un cristal en un lugar que normalmente debería estar vacío.

1.1.3) Defectos sustitucionales:

a) ion halógeno en sitio alcalino

b) agregados o defectos previos

c) defectos impureza: Impurezas químicas en un cristal y éstos pueden ser:

- Impurezas sustitucionales: un átomo Y toma el lugar de un átomo X.
- Impurezas intersticiales: un átomo Y es insertado en un sitio adicional que no pertenece a un cristal perfecto, estas impurezas son introducidas en el fundido del cristal y difundidas o implantadas en estados de crecimiento posteriores.

Para entender el mecanismo de las impurezas químicas se puede analizar la influencia de un ion divalente sobre una vacancia, ya que esta compensa el exceso de carga positiva o impureza.

Las impurezas monovalentes pueden estar presentes en la red en forma sustitucional y requieren la presencia de vacancias iónicas extrínsecas del signo apropiado para mantener la neutralidad en la carga [16]. En cristales doblemente impurificados la diversidad de los defectos se incrementa por la presencia de grupos heterogéneos compuestos por impurezas de carga contraria y debido al hecho de que un grupo particular tiene diversas posibilidades de configuración. Los cationes divalentes metálicos tales como (Ca^{2+} , Cd^{2+} , Mn^{2+} , Mg^{2+} , Pb^{2+} , etc.), requieren el mismo número de vacancias catiónicas en la red del sólido.

Los dieléctricos y semiconductores requieren neutralidad eléctrica, entonces la formación de una vacancia será acompañada de la redistribución de la carga. Los defectos permiten transiciones electrónicas dentro de la banda prohibida del material lo que resultará en la coloración del cristal, por el atrapamiento de un electrón en una vacancia. Los centros en los halogenuros alcalinos se definen como defectos puntuales, ya sean de tipo centros electrónicos o moléculas de halógenos. En las tablas 1.1 y 1.2 se definen estos defectos.

Centro	Descripción
V_K	Hueco autoatrapado sobre un par de iones de halógeno
H	Hueco atrapado a lo largo de cuatro iones de halógeno
V_4	Un halógeno di-intersticial, alineado probablemente a lo largo de (111)
H_A, H_B	Variantes del centro H adyacentes a iones impureza alcalinos
I	Ion halógeno intersticial

Tabla 1.1 Centros para huecos

Centro	Descripción
F^+	Vacancia aniónica, excitación de la red cerca de un centro F^+ , produce la banda α
F	Vacancia aniónica, con un electrón atrapado
F_A, F_B	Centro F en la frontera con una o dos impurezas metal alcalinas
F_Z	Una variación del centro F con un ion metálico divalente vecino
$F^{\cdot}, (F^{\cdot})$	Vacancia aniónica que tiene atrapados dos electrones
$F_2(M)$	Un par de centros F adyacentes
$F_3(R)$	Un arreglo triangular de tres centros F
$F_4(N)$	Cuatro centros F ligados
$F_2^{\cdot}, (M^{\cdot}), F_3^{\cdot}, (R^{\cdot}), F_4^{\cdot}, (N^{\cdot})$	Por analogía con el centro F, los centros F_2, F_3, F_4 , pueden atrapar un electrón adicionalmente

Tabla 1.2 Centros para electrones

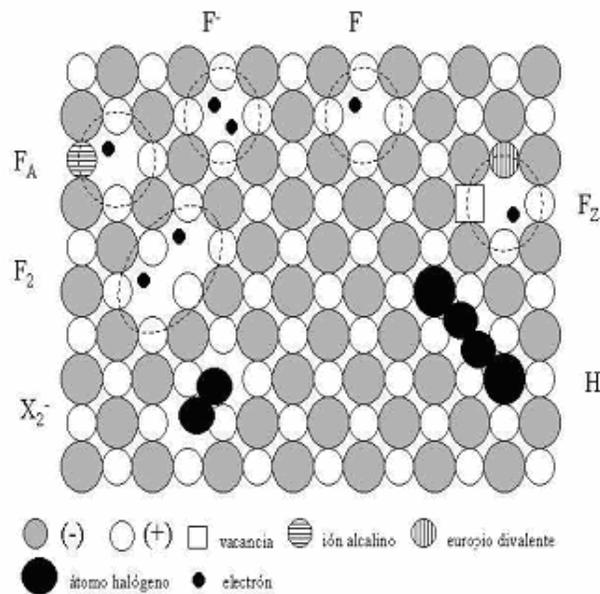


Figura 1.2 Defectos en halogenuros alcalinos [17].

La figura 1.2 es una representación bidimensional de los defectos presentes en la matriz cristalina $NaCl:Eu$ [17].

1.2 Radiación ionizante

Las radiaciones ionizantes son aquellas con energía, longitud de onda y frecuencia tales que al interactuar con un medio le transfieren energía suficiente para desligar a un electrón de su átomo. En el instante en el que el electrón es separado del átomo al que pertenecía, se produce un proceso que se llama ionización. La ionización es, por lo tanto, la formación de un par de iones, el negativo (el electrón libre) y el positivo (el átomo sin uno de sus electrones).

La ionización producida por una radiación incidente que interactúa con la materia puede ser directa o indirecta. La radiación electromagnética (rayos X y fotones gamma) es radiación indirectamente ionizante. La radiación directamente ionizante son las partículas cargadas (como los electrones y las partículas alfa), que interactúan con el medio.

1.2.1 Fotones gamma (γ)

Los rayos γ son radiación electromagnética acompañada por transiciones nucleares. En consecuencia, los fotones se llevan el exceso de energía cuando los núcleos realizan decaimientos γ de estados excitados a estados de menor energía. Entonces los fotones γ surgirán cuando un decaimiento α o β anterior ha producido alguno de los núcleos descendientes en un estado de excitación de algunos MeV [18]. La técnica más utilizada para medir la energía de los rayos γ usa el hecho de que los fotones transfieran sus energías a los electrones mediante los procesos de dispersión Compton, de absorción fotoeléctrica y de producción de pares descritos en la sección 1.3.

La figura 1.3 presenta el esquema de decaimiento del ^{60}Co .

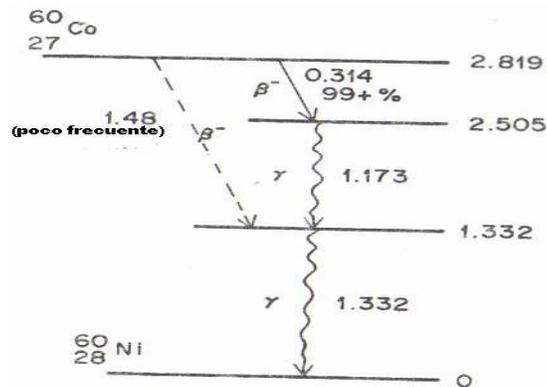


Figura 1. 3 Esquema de decaimiento del ^{60}Co [19]

De la figura 1.3 se observa que el ^{60}Co emite una partícula beta de 0.314 MeV y dos fotones γ característicos con energías de 1.173 y 1.332 MeV generando un descendiente el ^{60}Ni [19].

1.2.2 Rayos X

Roentgen en 1895 descubrió que los rayos X son producidos cuando un haz de electrones es acelerado y colisionan con un blanco metálico, en general se usa un blanco de tungsteno ya que tiene alta Z (74) y un alto punto de fusión (~ 3350 °C). El blanco debe enfriarse ya que la energía gastada en producir ionización y excitación, salvo la fracción emitida como rayos X de fluorescencia, se convierte en calor. La diferencia fundamental con los rayos gamma es su origen: los rayos gamma son radiaciones de origen nuclear que se producen por la desexcitación de un núcleo de un nivel excitado a otro de menor energía, mientras que los rayos X surgen de fenómenos atómicos a nivel de la órbita electrónica, fundamentalmente producidos por desaceleración de electrones [19].

1.2.2.1 Producción de rayos X

La producción de rayos X depende de la fuente de electrones y puede ser de dos clases: tubos con filamento o con gas. El tubo con filamento es de vidrio al vacío en el cual se encuentran dos electrodos en sus extremos. El cátodo consiste de un filamento de tungsteno que al ser calentado emite electrones. Estos electrones son acelerados, debido a una diferencia de potencial aplicada entre el cátodo y el ánodo, hacia un blanco montado en el ánodo. Para tener un mayor control en la calidad del haz de rayos X es necesario que los electrones no sean desviados de su trayectoria, y para esto se requiere de un alto vacío. Los electrones al ser frenados bruscamente en el blanco, emiten radiación electromagnética con un espectro continuo de energías entre 15 y 150 keV, que es lo que se conoce como rayos X.

El número atómico del material del que está construido el blanco y la velocidad del haz de electrones, determina la energía máxima y la forma del espectro. El haz tiene dos componentes, una de ellas es continua y corresponde a la radiación de frenado (bremsstrahlung) y la otra es discreta. A ésta última se le conoce como radiación característica y se debe a transiciones electrónicas entre estados excitados en átomos del blanco. El ánodo es refrigerado continuamente mediante la circulación de agua, pues parte de la energía de los electrones al colisionar con el blanco, se transforma en calor. Los electrones generados en el cátodo son enfocados hacia un punto en el blanco (que por lo general posee una inclinación de 17°) y durante de la colisión se generan los rayos X.

La figura 1.4 presenta un esquema de un tubo de rayos X.

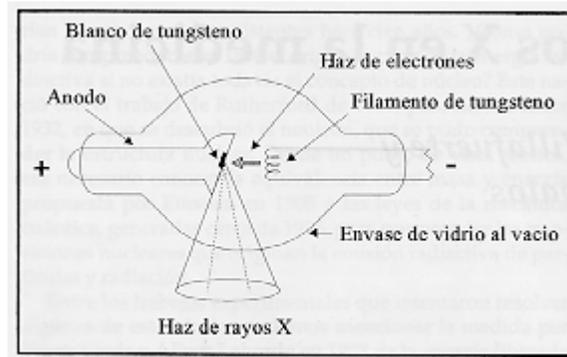


Figura 1.4 Diagrama de un tubo de rayos X [19].

1.2.2.2 Espectro continuo

En el tubo de rayos X los electrones se aceleran mediante una diferencia de potencial entre el cátodo y el ánodo. Los rayos X son producidos justo en la zona de impacto de los electrones y se emiten en todas direcciones. La energía adquirida por los electrones está determinada por el voltaje aplicado entre los dos electrodos. La energía del fotón emitido, por conservación de la energía y tomando los postulados de Planck es: $h\nu = K - K'$; donde K y K' son las energías cinéticas del electrón antes y después de la colisión. El punto de intersección con el eje x de la gráfica de espectro continuo (ver figura 1.5) es la longitud de onda mínima y está dada por $\lambda = \frac{1.240 \times 10^{-6}}{V} [m]$, donde la energía total emitida por segundo, es proporcional al área bajo la curva del espectro continuo con número atómico (Z) del blanco y número de electrones por segundo (i).

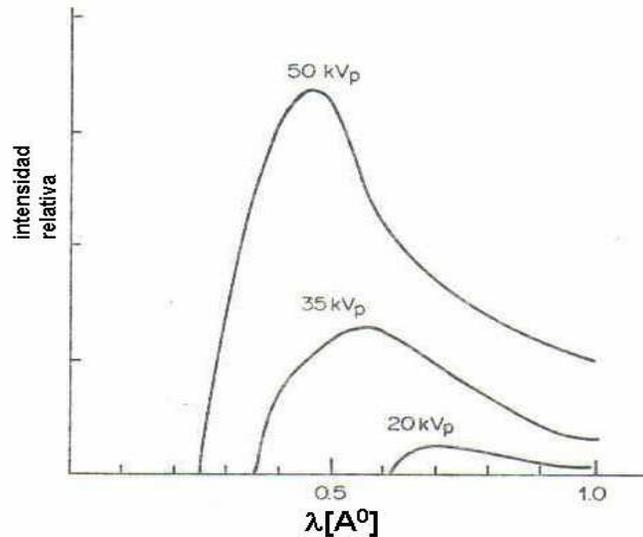


Figura 1.5 Espectro continuo de rayos X [19].

La figura 1.5 muestra el espectro continuo de rayos X generado por un tubo de rayos X que opera en tres diferentes voltajes con la misma corriente.

1.2.2.3 Espectro característico

Cuando los electrones son acelerados en el tubo de rayos X poseen cierta energía, y pueden pasar cerca de una capa interna de los átomos que componen el blanco. Debido a la energía que recibe el electrón, éste puede escapar del átomo, dejándolo en un estado excitado. Eventualmente, el átomo regresará a su estado de equilibrio emitiendo un conjunto de fotones de alta frecuencia, que corresponden al espectro de líneas de rayos X, el cual va a depender de la composición del material en el que incide el haz de rayos X. Para el molibdeno, la gráfica del espectro continuo muestra dos picos correspondientes de la serie K (ver figura 1.6).

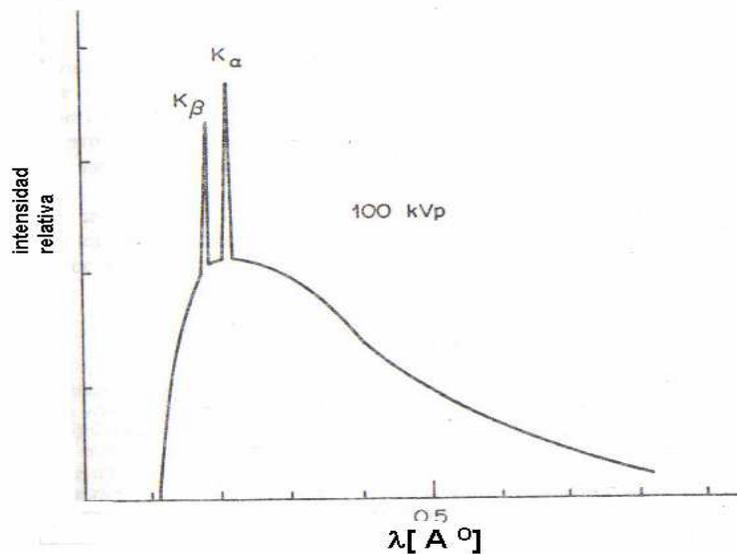


Figura 1.6 Espectro de rayos X característico del molibdeno [19].

La figura 1.6 presenta la relación entre la intensidad como función de la longitud de onda a una diferencia de potencial de 100 kVp para el molibdeno donde se muestran los picos característicos.

1.3 Interacción de la radiación ionizante con la materia

En la interacción de la radiación ionizante con la materia uno de los procesos más comunes es la producción de electrones, lo que dependerá de la energía del fotón y del número atómico del medio absorbedor. Contrariamente a las partículas cargadas, los fotones son eléctricamente neutros y no pierden toda su energía cuando penetran la materia, ellos pueden desplazarse cierta distancia antes de interaccionar con algún átomo. La distancia que puede penetrar un fotón en la materia está determinada por la probabilidad de interacción por unidad de distancia recorrida, la cual depende del medio y de la energía del fotón.

Cuando un fotón interactúa puede ser absorbido y desaparecer o puede ser dispersado cambiando su trayectoria con o sin la pérdida de energía. Los principales mecanismos de depósito de energía por fotones en la materia para este trabajo son:

1. Dispersión Compton,
2. Absorción fotoeléctrica,
3. Producción de pares,

A continuación se describirán las características de estos tres efectos por su relevancia en esta tesis, porque el mayor número de experimentos se realizó con fotones de ^{60}Co , con una energía promedio de 1.25 MeV y un experimento con fotones de rayos X con energías de 16, 24, 35, 42, 100 y 145 keV, y con fotones de ^{137}Cs con una energía de 0.662 MeV. Se indican con una línea en la figura 1.7 los números atómicos ($Z \approx 15-17$) de las preparaciones utilizadas en este trabajo.

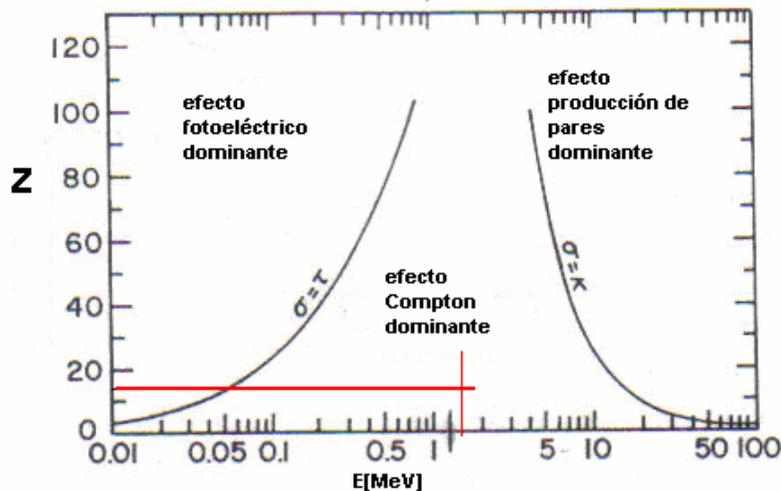


Figura 1.7 Predominancia de los tres tipos principales de interacción de los fotones [4].

La figura 1.7 muestra las regiones en donde predominan la absorción fotoeléctrica, la dispersión Compton y la producción de pares en función del número atómico del material y de la energía del haz de fotones incidentes.

1.3.1 Dispersión Compton

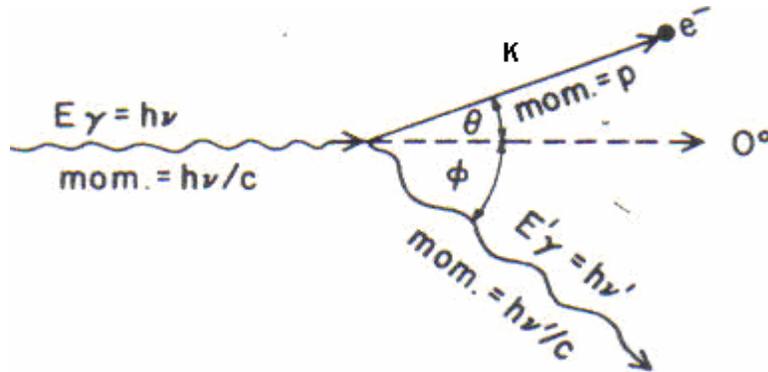


Figura 1.8 Cinemática de la dispersión Compton [4].

La figura 1.8 exhibe un esquema de la dispersión Compton, i.e. la interacción de un fotón de energía $h\nu$ con un electrón estacionario del medio absorbedor el cual es dispersado un ángulo θ relativo a la dirección inicial del fotón con una energía cinética K . El fotón dispersado $h\nu'$ sale a un ángulo ϕ sobre el lado opuesto de la dirección original en el mismo plano de dispersión.

La energía y el momento se conservan. Una descripción de este efecto se subdividirá en dos aspectos: la cinemática y la probabilidad de interacción [4]. La cinemática relaciona las energías y los ángulos de las partículas participantes cuando una dispersión Compton ocurre mientras que el coeficiente lineal de atenuación predice la probabilidad de que este efecto pueda ocurrir [4]. Las ecuaciones cinemáticas que describen la dispersión Compton tienen las siguientes expresiones:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + (h\nu / m_0c^2)(1 - \cos \theta)} \quad (1.1)$$

Un electrón adquiere energía cinética máxima cuando $\theta = 2\pi$ en este caso

$$K_{\max} = \frac{2h\nu}{2 + mc^2 / h\nu} \quad (1.2)$$

$$\cot \theta = \left(1 + \frac{h\nu}{m_0c^2} \right) \tan (\phi / 2) \quad (1.3)$$

Cuando θ es pequeño, $\cot \frac{\theta}{2}$ es grande y ϕ es cercano a $\pi/2$, en este caso el fotón viaja en línea recta, impartiendo poca energía al electrón, el cual se aleja casi perpendicularmente a la dirección del fotón incidente. Conforme θ se incrementa de 0^0 a 2π la $\cot \frac{\theta}{2}$ decrece de ∞ a 0.

Por lo tanto ϕ decrece de $\pi/2$ a 0, y el ángulo de retroceso del electrón ϕ esta confinado de $(0 \leq \phi \leq \pi/2)$ mientras que el fotón puede ser dispersado en alguna otra dirección.

Donde

$h\nu$:energía del fotón inicial,

$h\nu'$:energía del fotón después de la interacción,

m_0c^2 :energía del electrón en reposo,

$\frac{\sigma}{\rho}$: coeficiente másico de atenuación [cm^2/g]

donde ρ :densidad del material [g/cm^3].

1.3.2 Efecto fotoeléctrico

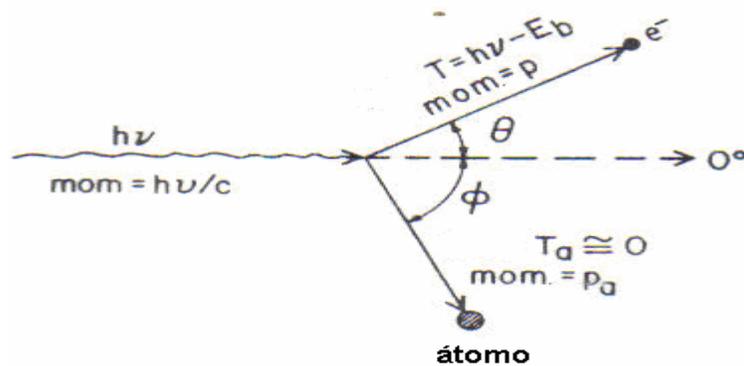


Figura 1.9 Cinemática del efecto fotoeléctrico [4].

La figura 1.9 presenta un esquema que describe la cinemática del efecto fotoeléctrico.

Un fotón de energía $h\nu$ choca con un electrón ligado al átomo con una energía E_b . El fotón desaparece dando una energía cinética $T = h\nu - E_b$ al electrón, el cual sale a un ángulo θ con respecto a la dirección del fotón incidente. El efecto fotoeléctrico es una interacción en la que el fotón cede toda su energía a un electrón, el fotón desaparece y el electrón, llamado fotoelectrón, sale expulsado con una energía cinética que es la diferencia entre la energía del fotón y la energía de ligadura o amarre del electrón con el átomo, esta interacción es con el átomo y no puede ocurrir con los electrones libres, existe conservación de energía y del momento, el fotoelectrón sale en cualquier dirección, el átomo residual por su gran masa se desplaza muy poco y su energía cinética es despreciable.

Este proceso tiene mayor probabilidad de ocurrir a bajas energías y con electrones fuertemente ligados, capas K y L, así como en elementos de alto Z.

Para que el efecto ocurra, el fotón debe tener energía mayor que la de ligadura del electrón. Las ecuaciones cinemáticas que describen el efecto fotoeléctrico tienen la siguiente expresión:

$$T = \hbar\omega - E_b - E_a$$

$$T = \hbar\omega - E_b \quad (1.4)$$

La energía cinética E_a dada al átomo en retroceso es cercana a cero. La expulsión del electrón deja una vacante en la capa K o L, la cual es ocupada por otro electrón con la consecuente emisión de uno o varios fotones de rayos X característicos. El coeficiente másico de atenuación para una dispersión

fotoeléctrica tiene la siguiente expresión: $\frac{\tau}{\rho} \sim \left(\frac{Z}{h\nu}\right)^3$ [cm^2/g], la probabilidad de una

interacción fotoeléctrica es proporcional a Z^3 y disminuye conforme la energía del fotón aumenta, y es inversamente proporcional a E^3 .

1.3.3 Producción de pares

La producción de pares es un proceso de absorción en el cual un fotón interacciona con un medio y desaparece dando lugar a la formación de un electrón y un positrón. Esto sólo puede ocurrir en presencia de un campo de fuerza de Coulomb, usualmente cerca del núcleo atómico. Un fotón con una energía mínima de $2m_0c^2 = 1.022\text{MeV}$ es requerido para producir el par e^+, e^- . [4].

El coeficiente másico de atenuación para la producción de pares tiene la siguiente expresión; κ/ρ [cm^2/g], donde ρ es la densidad del material.

1.3.4 Coeficientes másicos de atenuación, de transferencia de energía y de absorción de energía

En un medio absorbedor de espesor Δx , que contiene N átomos/cm³, hay (NZ) electrones/cm³ y $(NZ\Delta x)$ electrones/cm² de área de medio absorbedor. Si cada electrón del haz tiene una sección transversal efectiva de σ_e [cm²/electrón] entonces el área total de dispersión efectiva en 1 cm² de área del medio absorbedor es $(NZ\Delta x)\sigma_e$ esto es cm² de electrones / cm² del medio. Entonces si un haz de rayos X de intensidad I incide normalmente sobre el medio absorbedor y ΔI es la fracción de la intensidad del haz no transmitido, y la correspondiente energía ha sido dispersada más o menos en todas las direcciones por los electrones en el medio absorbedor [20], el decrecimiento en la intensidad del haz colimado es por tanto;

$$\Delta I = -INZ\sigma_e\Delta x \quad (1.5)$$

La cantidad $(NZ)\sigma_e$ tiene dimensiones de [cm⁻¹] y es frecuentemente nombrado coeficiente lineal de atenuación μ . Así se puede escribir

$$\frac{dI}{I} = -\mu dx$$

Integrando esta ecuación, se encuentra que, si una intensidad I_0 está incidiendo sobre un medio de espesor x en cm, la intensidad transmitida no dispersada I está dada por la expresión exponencial;

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu x} = e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)(x\rho)} \quad (1.6)$$

El espesor del medio absorbedor es frecuentemente expresado en unidades de masa por unidad de área. Si ρ [g/cm^3] es la densidad del material, el espesor es $(x\rho)$ [g/cm^2] y el coeficiente másico de atenuación tiene las unidades:

$$\frac{\mu}{\rho} [\text{cm}^2 / \text{g}] \quad (1.7)$$

El coeficiente másico de atenuación para interacciones de fotones con un material de densidad ρ puede ser escrito como:

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{\sigma}{\rho} + \frac{\tau}{\rho} + \frac{\kappa}{\rho} \quad (1.8)$$

1.3.4.1 Coeficiente másico de transferencia de energía $\frac{\mu_{tr}}{\rho}$

Es la fracción de energía de las partículas incidentes no cargadas que es transferida como energía cinética inicial de partículas cargadas, al atravesar una distancia x , de un material de densidad ρ , y está dado en unidades de [cm^2 / g] donde;

$$\frac{\mu_{tr}}{\rho} = \frac{\sigma_{tr}}{\rho} + \frac{\tau_{tr}}{\rho} + \frac{\kappa_{tr}}{\rho} \quad (1.9)$$

1.3.4.2 Coeficiente másico de absorción de energía $\frac{\mu_{en}}{\rho}$

Para partículas no cargadas, está relacionado con el coeficiente másico de transferencia de energía mediante la siguiente relación:

$$\frac{\mu_{en}}{\rho} = \frac{\mu_{tr}}{\rho} (1 - g) \quad (1.10)$$

Donde g representa la fracción promedio de energía de los electrones secundarios que se pierde en interacciones radiativas en el material [4].

Si un material está compuesto de diferentes elementos, el coeficiente másico de absorción es aditivo, de tal manera que;

$$\frac{\mu}{\rho} = w_1 \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_1 + w_2 \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_2 + \dots \quad (1.11)$$

donde w_i es la fracción de cada elemento constituyente.

1.4 Luminiscencia

La luminiscencia es la emisión de luz por algunos fósforos. Esta emisión, que no incluye la radiación de cuerpo negro, es la liberación de energía depositada dentro del sólido a través de algún tipo de excitación anterior del sistema electrónico, por ejemplo con radiación ionizante. La capacidad de almacenar la energía depositada por radiación es importante en dosimetría luminiscente y generalmente está asociada con la presencia de átomos impureza y defectos estructurales.

1.4.1 Fluorescencia y absorción

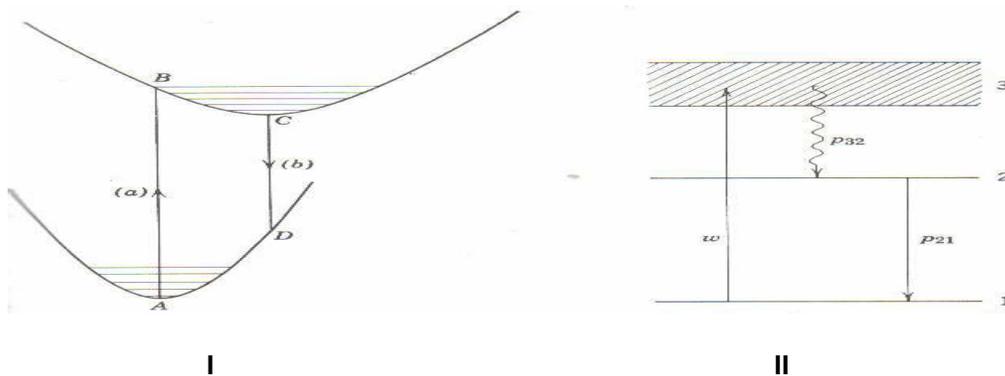


Figura 1.10 Diagrama de un centro luminiscente [21], I) Absorción y fluorescencia de acuerdo al modelo de coordenada configuracional a) Absorción, b) fluorescencia

II) Sistema de tres niveles con un nivel fluorescente y un decaimiento entre el nivel 3 y 2.

La figura 1.10 describe la absorción y fluorescencia de un centro impureza.

Una impureza en un cristal puede ser representada por el modelo de coordenada configuracional como el mostrado en la figura 1.10 (I) en este se supondrá que el ion está en el estado vibracional base. Una transición energética de A hacia B puede ser inducida por la absorción de un fotón de energía $E_B - E_A$.

El ion impureza será llevado a un estado electrónico excitado y a un nivel vibracional excitado de este estado. Como consecuencia del principio de Franck-Condon el átomo no cambia su posición durante una transición electrónica, inmediatamente después de la absorción [21].

Después de la absorción el centro impureza tiende a transferir energía vibracional a la red y decaer al estado vibracional de menor energía etiquetado por C, de este nivel el ion impureza posteriormente decaerá al estado electrónico base (nivel D) con energía $E_C - E_D$ emitiendo radiación fluorescente. Del estado D entonces el ion decaerá a su nivel vibracional más bajo [21].

El diagrama de energías figura 1.10 (II) puede ser usado para representar las transiciones de un ion en la red. La luz incidente excita al ion del estado base 1 a un estado excitado representado por la banda de absorción 3.

El ion entonces decae por una rápida transición en la cual no hay emisión o absorción de un fotón a un estado metaestable (estado 2). De este nivel el ion decae a un estado base por procesos radiativos y por otros procesos que pueden ser llamados secundarios. La probabilidad por unidad de tiempo que un ion haga una transición del estado base a la banda de absorción está dada por w .

La probabilidad de transición por unidad de tiempo del nivel 2 al nivel 1 es p_{21} [21]. En este caso se hará la siguiente suposición; para un ion en el nivel 3, la probabilidad de decaer al estado base es despreciable comparada con la probabilidad de una transición al nivel 2 en la cual no hay emisión o absorción de un fotón. La fluorescencia también es un proceso luminiscente el cual persiste mientras la excitación sea continua.

1.4.2 Fosforescencia

La fosforescencia es la luminiscencia observable después de remover la fuente de excitación. El tiempo de decaimiento de la fosforescencia es dependiente de la temperatura. La figura 1.11 es un diagrama de niveles de energía el cual es modificado por la presencia de un nivel metaestable m en la banda prohibida entre los niveles e y b . Un electrón es excitado del nivel b al e pero puede ser atrapado en el nivel m donde puede permanecer hasta que se le proporcione suficiente energía E para retornar al nivel excitado e de donde puede realizar una transición al nivel b , con la emisión de un fotón.

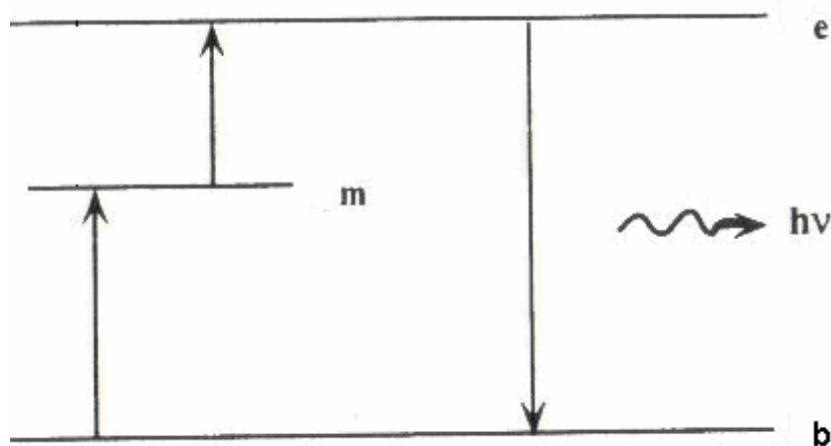


Figura 1.11 Proceso de fosforescencia [22].

1.5 Termoluminiscencia

La termoluminiscencia, es la emisión de luz por un sólido cristalino previamente irradiado con fotones gamma, rayos X, partículas cargadas o neutrones y posteriormente estimulado por calor, este es un caso de fosforescencia bajo una condición de incremento de temperatura. En los experimentos usuales de termoluminiscencia, un cristal es irradiado a cierta temperatura a la cual la intensidad fosforescente es baja, y posteriormente es calentado en un intervalo de temperatura, donde la fosforescencia es máxima, hasta un nivel de temperatura a la cual todas las cargas han sido excitadas térmicamente fuera de sus estados metaestables, y la luminiscencia desaparece completamente.

Si se dibuja la intensidad de la luz como función de la temperatura la gráfica resultante es una curva de brillo (ver figura 1.12).

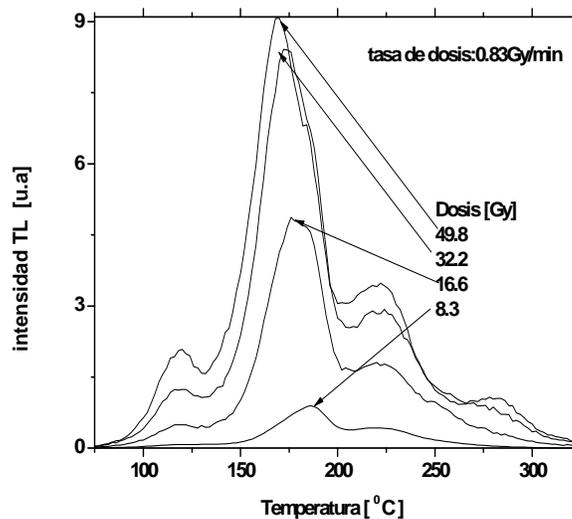


Figura 1.12 Curvas de brillo del NaCl:CaCl₂MnCl₂ irradiado con rayos γ de ⁶⁰Co a diferentes dosis [23].

Las curvas de brillo tienen uno o varios picos de brillo que son función del número de trampas en diferentes niveles de energía. Por medio de la termoluminiscencia se pueden analizar el efecto de la radiación ionizante en materiales irradiados, además de ser un método que permite obtener medidas precisas de la dosis.

La absorción de la radiación ionizante en un material incrementa la intensidad termoluminiscente por el llenado de niveles de energía con electrones atrapados.

Así, la curva de brillo de un sólido cristalino es el resultado de la competencia entre trampas llenas por el efecto de la radiación y el vaciado de las trampas por excitación térmica a una temperatura de irradiación específica. A continuación se describirán las etapas de la termoluminiscencia en las figuras 1.13 y 1.14.

1.5.1 Irradiación

La irradiación de un sólido con radiación ionizante produce electrones y huecos de acuerdo al modelo de bandas, la figura 1.13 describe esta situación:

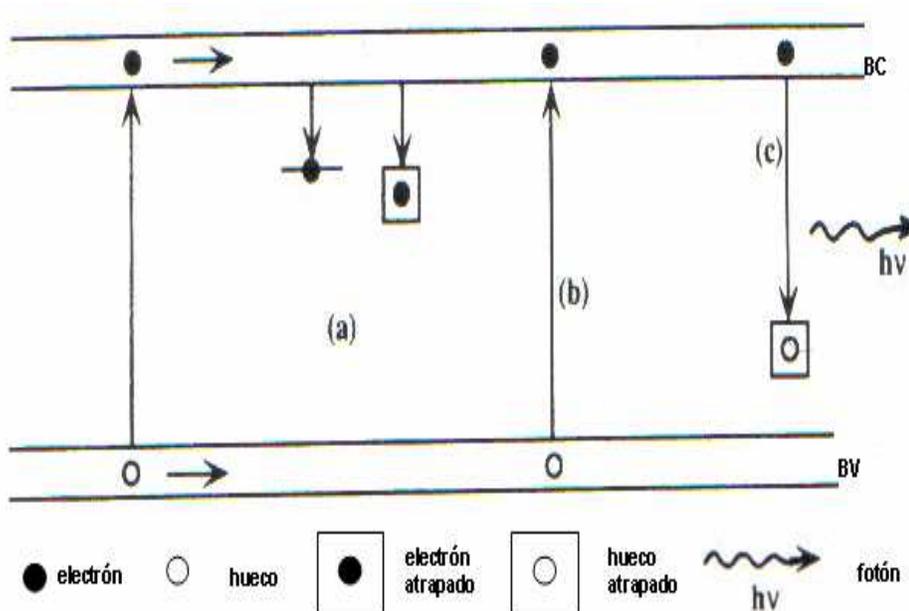


Figura 1.13 Mecanismo de termoluminiscencia durante la irradiación del cristal [22].

- a) los electrones son libres y pueden viajar a través del sólido en la banda de conducción por un intervalo de tiempo o pueden ser atrapados en los defectos
- b) los electrones se desplazan a través de la banda de conducción y
- c) pueden ser capturados en centros luminiscentes (probablemente en trampas muy profundas) que ya han sido activadas por huecos como resultado de la irradiación y desactivan el centro con la emisión de luz.

1.5.2 Calentamiento

Como se ilustra en la figura 1.14 los electrones atrapados en estados metaestables adquieren suficiente energía; para escapar de las trampas a la banda de conducción y entonces pueden ser reatrapados en los defectos (a) o caer a la banda de valencia y recombinarse radiativamente o no radiativamente con huecos (b) o recombinarse radiativamente en un centro luminiscente(c).

La luz emitida por el último proceso es la termoluminiscencia. Las transiciones radiativas directas de electrones de la banda de conducción a la banda de valencia originan radiación que tiene una energía menor o igual que la energía entre estas bandas y consecuentemente ocurre autoabsorción.

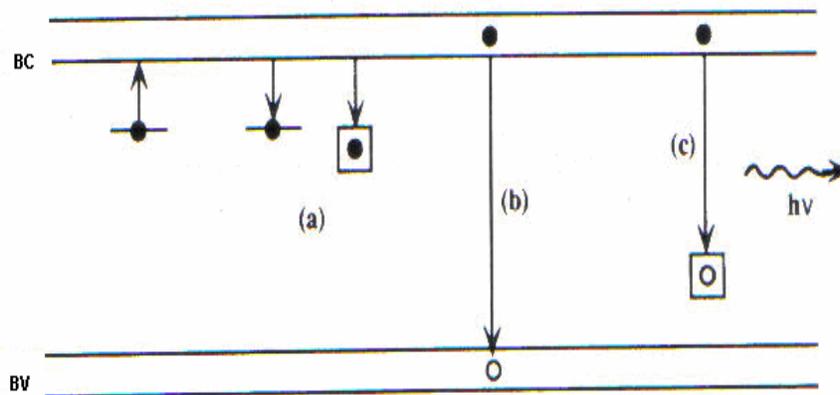


Figura 1.14 Mecanismo de termoluminiscencia durante el calentamiento del cristal [22].

El comportamiento de algunos materiales puede ser explicado suponiendo una competencia de trampas durante la fase de lectura, en lugar de la competencia durante la irradiación. Chen y Fogel [24] discutieron las ventajas de tratar por separado tales procesos. La principal suposición es que la competencia entre trampas ocurre durante la irradiación, y no durante la lectura y viceversa, ellos sugieren un modelo que combine las características de los dos modelos competencia durante la lectura y excitación.

1.6 Parámetros cinéticos

En la caracterización de un material termoluminiscente se deben conocer los parámetros cinéticos, los cuales describen un estado de atrapamiento, estos son: la energía de activación (E) y el factor de frecuencia (s).

1.6.1 Energía de activación

Es la energía E , expresada en [eV], asignada a un estado metaestable o un nivel de energía dentro de la banda prohibida, entre la banda de valencia (BV) y la banda de conducción (BC). Esta energía también es llamada ancho de la trampa o profundidad. Este estado energético puede ser un electrón atrapado cerca de la banda de conducción, o un hueco atrapado cerca de la banda de valencia. Los estados metaestables producen defectos en la estructura cristalina. Un cristal puede contener diversos tipos de trampas y centros luminiscentes, si la energía E es varias veces mayor que kT , donde k es la constante de Boltzman (8.617×10^{-5} eV/K), entonces la carga atrapada puede permanecer en la trampa por un largo periodo.

Para un electrón atrapado, la energía E está medida del nivel de la trampa al fondo la banda de conducción. Para un hueco atrapado, es medida de la trampa a la parte superior de la banda de valencia [14].

1.6.2 Factor de frecuencia

El factor de frecuencia, s es conocido como la frecuencia de intento de escape y es interpretado como el número de veces por segundo ν , que un electrón interacciona con la red cristalina del sólido, multiplicado por la probabilidad de transición κ , y por un término que toma en cuenta el cambio en entropía ΔS asociado con la transición de la trampa a la banda deslocalizada [14]. Este factor s puede ser escrito como:

$$s = \nu \kappa \exp\left(\frac{\Delta S}{k}\right) \quad (1.12)$$

donde k es la constante de Boltzman.

El valor mínimo esperado de s debe ser similar a la frecuencia vibracional de la red (frecuencia de Debye), es decir de 10^{12} a 10^{14} s⁻¹. Randall y Wilkins [14] propusieron la trampa como una barrera de potencial y s es el producto entre la frecuencia con la cual los electrones atrapados interaccionan con las barreras del potencial y el coeficiente de reflexión. De acuerdo a esta definición, se puede esperar que s sea del orden de la frecuencia vibracional de la red del cristal, i.e. aproximadamente 10^{12} s⁻¹. Alternativamente s se podría relacionar con la sección transversal de captura, σ de la trampa por [14]:

$$s = \nu_e N_c \sigma \quad (1.13)$$

donde;

v_e : velocidad térmica de los electrones en la banda de conducción,

N_c : densidad de estados (niveles disponibles para el electrón) cerca del fondo de la banda de conducción

σ : sección transversal de captura.

En este caso los valores de s están en el intervalo de 10^8 a 10^{14} [s^{-1}].

1.7 Modelos de cinética

1.7.1 Cinética de primer orden (atrapamiento)

En 1945 Randall y Wilkins [22] propusieron una representación matemática para cada pico de brillo en una curva TL con las siguientes suposiciones:

1.-La irradiación del sólido debe de ser a una temperatura específica para que no se presente liberación de los electrones.

2.-El aumento de la temperatura debe ser a una rapidez constante de calentamiento $T = T_0 + \beta t$.

La teoría de Randall y Wilkins establece una cinética de primer orden y un sólo ancho de trampa, así que la intensidad TL en alguna temperatura es directamente proporcional a la rapidez de desatrapamiento [22]:

$$I = -\frac{dn}{dt} = s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] n \quad (1.14)$$

donde

n : concentración de electrones atrapados en algún tiempo t ,

$p = s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right]$: probabilidad de que un electrón escape de la trampa [s^{-1}],

s : factor de frecuencia [s^{-1}],

E : ancho de la trampa [eV],

T : temperatura [K],

k : constante de Boltzman.

Usando una rapidez de calentamiento

$$\beta = \frac{dT}{dt} \rightarrow dt = \frac{dT}{\beta}$$

Integrando la ecuación (1.14)

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n} = - \int_{T_0}^T s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \frac{dT}{\beta},$$

$$\log\left(\frac{n}{n_0}\right) = -\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right]$$

$$n = n_0 \exp\left[\left(-\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT\right] \quad (1.15)$$

donde n_0 es el número de electrones atrapados al tiempo $t=0$, sustituyendo la ecuación 1.15 en la 1.14 se obtiene;

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] n = n_0 s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \exp\left[\left(-\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT\right] \quad (1.16)$$

Esta expresión puede ser evaluada por medio de integración numérica y genera un pico de brillo como el de la figura 1.15 con una intensidad máxima I_M a una temperatura máxima T_M [22].

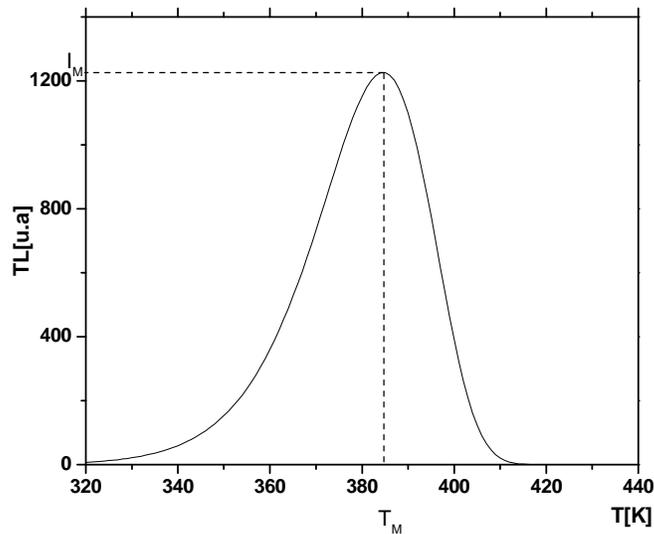


Figura 1.15 Curva de brillo obtenida a partir de la ecuación 1.16 [22].

La integral de la intensidad I está dada por S :

$$S = \int_0^{\infty} I dt = - \int_0^{\infty} \left(\frac{dn}{dt} \right) dt = n_0 \quad (1.17)$$

Así, S es proporcional al número inicial de cargas atrapadas y es independiente de la rapidez de calentamiento. Si el número de cargas atrapadas es proporcional a la dosis, entonces S es proporcional también a la dosis [22]. Esta propiedad es de fundamental importancia en dosimetría clínica i.e. radioterapia y radiodiagnóstico [22].

1.7.2 Cinética de segundo orden (atrapamiento – reatrapamiento)

En 1948 Garlick y Gibson [22] consideraron el caso cuando un portador de carga tiene la misma probabilidad de ser atrapado o de recombinarse en un centro termoluminiscente, la relación para una cinética de segundo orden es:

$$\frac{dn}{dt} = -s' \exp \left[-\frac{E}{kT} \right] n^2 \quad (1.18)$$

Donde $s' = s/N$ es el factor pre-exponencial [cm^3/s] y N es la concentración de trampas disponibles para electrones. La cual es diferente a la utilizada para una cinética de primer orden donde la probabilidad de recombinación es igual a 1, y por lo tanto no hay reatrapamiento posible. Integrando la ecuación 1.18 y tomando en cuenta que $\beta = \frac{dT}{dt} \rightarrow dt = \frac{dT}{\beta}$ se obtiene;

$$\frac{dn}{n^2} = -\frac{s'}{\beta} \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT$$

por lo tanto,

$$\int_{n_o}^n \frac{dn}{n^2} = -\frac{s'}{\beta} \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \quad \text{así}$$

$$\frac{1}{n_o} - \frac{1}{n} = -\frac{s'}{\beta} \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT,$$

$$n = n_o \left[1 + \left(\frac{s' n_o}{\beta} \right) \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \right]^{-1} \quad (1.19)$$

Sustituyendo la ecuación 1.19 en la 1.18 la intensidad TL estará dada por:

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = -s' \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] n^2 = \frac{n_o^2 s' \exp\left[-\frac{E}{kT}\right]}{\left[1 + \left(\frac{s' n_o}{\beta} \right) \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \right]^2} \quad (1.20)$$

1.7.3) Cinética de orden general

Cuando las condiciones para primer o segundo orden no son satisfechas, se debe recurrir a un orden general el cual sirve para casos intermedios $1 < b \leq 2$.

En 1964 May y Partridge [25] observaron que la curva de brillo del KCl presentaba una cinética de 3/2 y que era necesario un modelo más complejo que el establecido para primer orden que lograra explicar este comportamiento.

El orden general es estudiado empíricamente, se hace la suposición de un sólo nivel de energía de trampa, de igual forma como ha sido supuesto para las cinéticas de primer y segundo orden. Ahora se supone que el número de portadores de carga presente en un sólo nivel energético es proporcional a n^b .

Entonces la probabilidad de escape estará dada por:

$$\frac{dn}{dt} = -s' \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] n^b \quad (1.21)$$

la relación (1.21) se conoce como de orden general y el valor de b está en el intervalo entre 1 y 2. El factor pre-exponencial s' tiene unidades de $\text{cm}^{3(b-1)} \text{s}^{-1}$.

De la ecuación 1.21 se puede deducir la expresión de la respuesta TL para una

rapidez de calentamiento $\beta = \frac{dT}{dt} \rightarrow dt = \frac{dT}{\beta}$ se obtiene la siguiente relación:

$$\frac{dn}{n^b} = s' \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \frac{dT}{\beta},$$

$$\frac{n^{1-b} - n_o^{1-b}}{1-b} = -\frac{s'}{\beta} \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT,$$

$$n^{1-b} = n_o^{1-b} \left[1 + \frac{s n_o^{1-b}}{\beta} \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \right]$$

Elevando ambos términos de la igualdad a $(1-b)^{-1}$ se tiene que;

$$n = n_o \left[1 + \frac{s'}{\beta} (b-1) \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (1.22)$$

donde $s' = sn_o^{b-1}$ y la intensidad TL está dada por:

$$I(T) = sn_o^b \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \left[1 + \frac{s'}{\beta} (b-1) \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \right]^{\frac{b}{b-1}}$$

sustituyendo $sn_o^b = s'n_o$ se obtiene la forma final de la expresión para la $I(T)$;

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = s' \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] n^b = s'n_o \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \left[1 + \frac{s'}{\beta} (b-1) \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \right]^{\frac{b}{b-1}} \quad (1.23)$$

Es importante mencionar dos de los factores que contribuyen a la $I(T)$;

- El factor pre-exponencial se incrementa conforme T aumenta;
- El término $\left[1 + \frac{s'}{\beta} (b-1) \int_{T_o}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \right]$ decrece conforme T se incrementa.

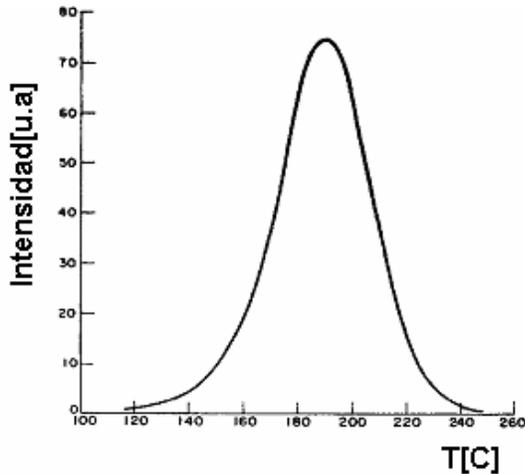


Figura 1.16 Pico de brillo del cristal KCl con una cinética orden general [25].

La figura 1.16 muestra un pico de brillo del cristal de KCl con una cinética de orden general.

1.8 Efecto de la temperatura de irradiación (T_{irr}) sobre la respuesta TL.

Los mecanismos responsables la respuesta TL a bajas temperaturas i.e. (77 y 200 K) son la activación del par electrón- V_K , o el desatrapamiento de electrones de sus trampas para su posterior recombinación con iones impureza. Por ejemplo la irradiación de soluciones en estado sólido a temperaturas de nitrógeno líquido, previene algunos procesos tal como la activación térmica, ya que ésta toma lugar en los estados primarios de irradiación (centros F, H, V_K) que inducen la termoluminiscencia.

La respuesta TL a una temperatura de irradiación de 77 K, del KCl:Eu se atribuye a la activación térmica de los centros H, H_a o V_K [26], en el caso del NaCl:Eu irradiado con rayos X y a la misma temperatura el mecanismo podría ser producido por el desatrapamiento de electrones o huecos de diferentes trampas para su posterior recombinación con Eu^+ [26]. El calentamiento posterior a la irradiación inicia procesos como la recombinación de los centros F y H lo que induce la generación de algunos de los picos termoluminiscentes que pueden producirse a bajas temperaturas, de 20 a 50 K y entre vacancias y centros I o entre electrones y centros V_K [26].

1.9 Reproducibilidad de los sistemas termoluminiscentes

La reproducibilidad de un sistema TL es una propiedad dosimétrica que depende del lector TL, los dosímetros y la lectura de los cristales. Un método para medir los cambios de un sistema TL es con los índices de variabilidad y así lograr identificar las fuentes de variación en la reproducibilidad.

A continuación se definirán los coeficientes de variación;

1) Índice de variabilidad del sistema (IVS): Valor promedio de la desviación estándar porcentual de cada detector. Esta cantidad proporciona una medida de la reproducibilidad de todo el sistema [28].

2) Índice de variabilidad del lector (IVL): Son las desviaciones estándar porcentuales de los valores promedio de cada ciclo de lectura y es medida en un periodo de reproducibilidad del lector [28].

3) Índice de variabilidad del detector (IVD): Esta cantidad es una medida de la reproducibilidad de los cristales [28].

La relación que define el índice de variabilidad del lector está definida como:

$$IVD = \sqrt{(IVS)^2 - (IVL)^2} \quad (1.24)$$

Donde;

$$\bar{X} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n X_i, \quad (1.25)$$

$$\sigma^2 = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2 \quad (1.26)$$

Las ecuaciones 1.25 y 1.26 son la media aritmética o promedio y la desviación estándar.

Para realizar este análisis se construye una matriz de tamaño $n \times m$, donde n es el número de medición y m es el valor de la lectura TL, el cálculo se hará con respecto a las columnas y renglones. En el capítulo 3 se presentará el valor de cada índice además de una discusión de los resultados.

1.10 Desvanecimiento de la señal TL

Modelo teórico

El desvanecimiento de la señal TL es la pérdida no intencional de la respuesta TL y esto puede conducir a un error en la estimación de la dosis. El desvanecimiento puede ser inducido por la temperatura; por el hecho de que incluso a 300 K existe la probabilidad de que los portadores de carga puedan escapar de sus trampas. Otros tipos de desvanecimiento que no son dependientes de la temperatura son producidos por efectos cuánticos como por ejemplo, el efecto túnel [29] i.e. el paso de una carga atrapada a un sitio de recombinación. El desvanecimiento de la señal TL, puede ser un serio problema cuando los dosímetros TL son usados para monitorear radiación ionizante o UV.

Las expresiones de cinética de primer, segundo y orden general, permiten caracterizar el decaimiento de la señal TL después de la irradiación, i.e. exponencial para un decaimiento de primer orden, hiperbólico para un segundo orden, y un intermedio para un orden general. En la sección 1.7.1 se resolvió la ecuación 1.14 en esta sección se retomará la solución y se renombrará la expresión que define la probabilidad de escape por factor de desvanecimiento, así;

$$\lambda = p = s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right]: \text{probabilidad de escape o factor de desvanecimiento [s}^{-1}\text{].}$$

La integración de la ecuación 1.14 en función del factor de desvanecimiento

$$n(t) = n_o \exp[-\lambda t] \quad (1.27)$$

Por lo tanto la expresión de la intensidad $I(t)$ está dada por:

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n\lambda = n_o \exp[-\lambda t] \lambda \quad (1.28)$$

integrando la ecuación (1.28) , se obtiene

$$n(t) - n(\infty) = \int_t^{\infty} I dt$$

Tomando en cuenta un sólo pico, $n(\infty) = 0$ y

$$n(t) = \int_t^{\infty} I dt = \Phi \quad (1.29)$$

La integral en la ecuación (1.29) proporciona el área total Φ del pico y coincide numéricamente con n [30]. En este sentido, las ecuaciones (1.14) y (1.28) pueden ser reescritas como:

$$\frac{d\Phi}{dt} = -\Phi \lambda$$

Resolviendo

$$\Phi(t) = \Phi_o \exp[-\lambda t] \quad (1.30)$$

A partir de la ecuación 1.30 se conocerá el desvanecimiento de la señal TL como función del tiempo y esto resultará útil, cuando se aplique este modelo.



Figura 1.13 Descripción experimental del modelo, irradiación de las muestras a una dosis D_0 seguida por un almacenamiento a temperatura ambiente [30].

La figura 1.13 ilustra la situación experimental que describe este modelo.

1.10.1 Expresiones de cinética de primer orden

Una posible explicación del desvanecimiento de la señal TL es que durante la irradiación de un dosímetro TL dos efectos compiten simultáneamente; uno es la rapidez de atrapamiento debida a la continua irradiación durante el periodo experimental, y el segundo es la rapidez de desatrapamiento, la cual toma lugar al mismo tiempo, i.e. desvanecimiento térmico. De acuerdo al modelo propuesto por Kitis y Furetta [30] esta situación puede ser descrita por la siguiente ecuación diferencial de primer orden:

$$\frac{d\Phi}{dt} = -\lambda\Phi + \frac{\dot{D}_r}{F_c} \quad (1.31)$$

donde:

Φ : intensidad TL de un pico en la curva de brillo [u.a],

\dot{D}_r : tasa de dosis [Gy/ u.t]

F_c : factor de calibración del sistema TL [dosis/TL]

la solución de la ecuación (1.31) está dada por:

$$\Phi = \Phi_o \exp[-\lambda t] + \frac{\dot{D}_r}{\lambda F_c} [1 - \exp[-\lambda t]] \quad (1.32)$$

La relación (1.32) presenta una situación donde la población de cargas es diferente de cero, al inicio del periodo experimental, i.e. $\Phi_o \neq 0$. Considerando una situación práctica donde los dosímetros TL son calentados antes de usarse, y todas las trampas están vacías al inicio del periodo experimental la ecuación (1.32) se reduce a:

$$\Phi = \frac{\dot{D}_r}{\lambda F_c} [1 - \exp[-\lambda t]] \quad (1.33)$$

cuando ha transcurrido un largo periodo i.e. $t \rightarrow \infty$, Φ tiene un valor asintótico

$$\Phi = \frac{\dot{D}_r}{\lambda F_c} \quad (1.34)$$

Este valor aumenta conforme se incrementa la tasa de dosis y/o la sensibilidad o los efectos del desvanecimiento decrecen. El valor asintótico dado por la ecuación (1.34) puede ser descrito suponiendo que ha transcurrido un largo periodo y es alcanzado un equilibrio dinámico, suministrando cargas atrapadas que se compensan a cada instante a las que escapan debido al desvanecimiento [30].

1.11 Respuesta TL como función de la dosis, linealidad y no-linealidad, e índices $f(D)$ y $g(D)$

La curva de la respuesta TL como función de la dosis, relaciona la competencia entre una o varias trampas y uno o varios centros de recombinación que generan un pico o una curva de brillo, esto tiene por consecuencia procesos de recombinación, y reatrapamiento independientes o simultáneos.

El valor de la respuesta TL puede ser el área total de la curva de brillo o la intensidad máxima de un pico de brillo, en este análisis se utilizó el área total de la curva de brillo.

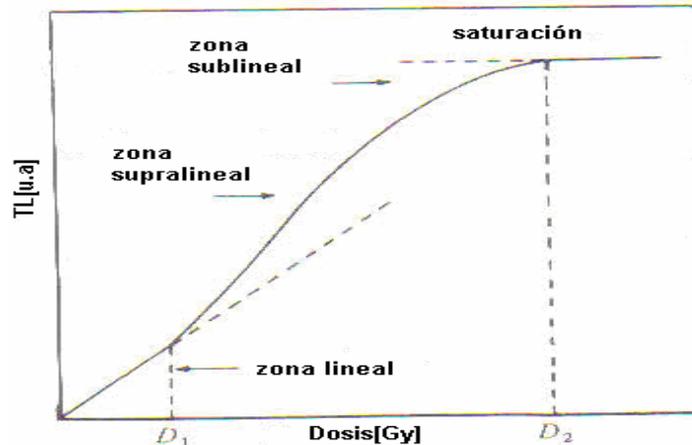


Figura 1.17 Zonas de la respuesta TL como función de la dosis [27].

La figura 1.17 exhibe una curva hipotética de las cuatro posibles zonas en la curva respuesta TL como función de la dosis.

La primera acción a tomar sobre el comportamiento de la respuesta TL como función de la dosis de un material es encontrar si la respuesta TL del sólido cristalino crece linealmente con la dosis en algún intervalo, y esto puede ser llevado a cabo mediante la evaluación de los índices de supralinealidad y superlinealidad $f(D)$ y $g(D)$, propuestos por McKeever y Chen [14].

El índice de superlinealidad $g(D)$ indica el cambio en la pendiente de la respuesta TL como función de la dosis.

El índice de supralinealidad $f(D)$ es definido como la dependencia funcional de la intensidad TL con la dosis.

Chen y Bowman [14] han establecido que el término superlineal está reservado para indicar el incremento en la derivada de la función $M(D)$, donde M indica el valor de la señal TL, que puede elegirse como el área o la altura máxima del pico de brillo, esta función surgió de la teoría de Katz-Waligorski [31][32] [33][34], este modelo es conocido como de multi-golpe o de reacción en multi-estados y está fundamentado en el requisito de que una trampa es activada en dos estados o más antes de que pueda tomar parte activa en el proceso termoluminiscente. La expresión analítica está descrita por la ecuación 1.35 que es la suma de dos exponenciales:

$$M(D) = \underbrace{M_1(D) \left(1 - \exp \left[-\frac{D}{E_{01}} \right] \right)}_{1\text{-golpe}} + \underbrace{M_2(D) \left(1 - \left(1 + \frac{D}{E_{02}} \right) \exp \left[-\frac{D}{E_{02}} \right] \right)}_{2\text{-golpes}} \quad (1.35)$$

Donde;

$M_1(D), M_2(D)$: contribuciones de la señal TL (área o intensidad máxima);

D : dosis;

E_{01}, E_{02} : dosis característica de los fotones gamma a la cual hay en promedio

1-golpe y 2-golpes respectivamente,

$1 - \exp \left[-\frac{D}{E_{01}} \right]$: representa la probabilidad de interacción de 1-golpe y

$1 - \left(1 + \frac{D}{E_{02}} \right) \exp \left[-\frac{D}{E_{02}} \right]$: representa la probabilidad de interacción de 2-golpes.

La primera derivada de la ecuación (1.35) está dada por:

$$M'(D) = M_1(D) \left(\frac{1}{E_{01}} \right) \exp \left[-\frac{D}{E_{01}} \right] + M_2(D) \left(\frac{1}{E_{02}} \right)^2 D \exp \left[-\frac{D}{E_{02}} \right] \quad (1.36)$$

La segunda derivada es:

$$M'' = -M_1(D) \left(\frac{1}{E_{01}} \right)^2 \exp \left[-\frac{D}{E_{01}} \right] + M_2(D) \left(\frac{1}{E_{02}} \right)^2 \left(1 - \frac{D}{E_{02}} \right) \exp \left[-\frac{D}{E_{02}} \right] \quad (1.37)$$

Por lo tanto,

Si, $M''(D) > 0 \Rightarrow M'(D)$ se incrementa en $D \Rightarrow M(D)$ se incrementa y entonces es supralineal;

Si, $M''(D) < 0 \Rightarrow M'(D)$ se incrementa en $D \Rightarrow M(D)$ decrece y entonces es sublineal;

Si, $M''(D) = 0 \Rightarrow M'(D)$ es constante en $D \Rightarrow M(D)$ es lineal.

La expresión del índice $g(D)$ está dada por [14]:

$$g(D) = \frac{D \cdot M''(D)}{M'(D)} + 1 \quad (1.38)$$

y las siguientes condiciones son posibles:

- $g(D) > 1$ indica superlinealidad,
- $g(D) = 1$ significa linealidad,
- $g(D) < 1$ significa sublinealidad.

La relación que define el índice $f(D)$ es la siguiente [14]:

$$f(D) = \frac{M(D) / D}{M(D_i) / D_i} \quad (1.39)$$

Donde;

D_i : dosis de normalización en la zona lineal.

Algunos autores han propuesto la siguiente modificación a la expresión anterior [14]:

$$f(D) = \frac{(M(D) - M_o) / D}{(M(D_1) - M_o) / D_1} \quad (1.40)$$

donde,

M_o : intersección de la curva respuesta TL con el eje de las ordenadas.

La ventaja de la ecuación 1.40 está en la posibilidad de aplicarla a los casos en los cuales la región supralineal precede a la región lineal, en este caso el valor de M_o es negativo, y no tiene significado físico [14].

Para el índice $f(D)$ los siguientes casos son posibles:

$f(D) > 1$ indica supralinealidad,

$f(D) = 1$ significa linealidad,

$f(D) < 1$ significa sublinealidad.

A partir del ajuste de los datos experimentales con las ecuaciones 1.38 y 1.39, se obtienen las gráficas de los índices $f(D)$ y $g(D)$, las cuales se analizarán y se mostrarán en el capítulo 3.

M''	M'	M	Concavidad de M	g	Comportamiento	Supralineal	Sublineal
>0	inc>0	inc	↑	>1	Superlineal	$f > 1$	
<0	dec>0	inc	↓	<1	Sublineal	$f > 1$	
<0	dec>0	inc	↓	<1	Sublineal		$f < 1$
>0	inc>0			1		f=1 lineal	
>0	inc>0	inc	↓	1		$f > 1$	
<0	dec>0	inc	↓	1			$f < 1$

Tabla 1.3 Resumen de varias configuraciones [12]

La tabla 1.3 resume algunas opciones para los valores de la función M , su primera y segunda derivada y el efecto sobre los índices $f(D)$ y $g(D)$.

1.12 Respuesta relativa como función de la energía

La respuesta TL con la energía o dependencia con la energía, es una medida de la energía absorbida por el material termoluminiscente en comparación con la energía absorbida en un material de referencia (i.e. aire o tejido humano), cuando éste es irradiado a la misma dosis [14]. La respuesta energética $S(E)$ está dada por:

$$S(E) = \frac{\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_{DTL}}{\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_{aire}} \quad (1.41)$$

donde; $\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_{DTL}$ y $\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_{aire}$ son los coeficientes másicos de absorción de energía

para el dosímetro termoluminiscente (DTL) y el aire, respectivamente.

La energía promedio de los fotones gamma emitidos por una fuente de ^{60}Co (1.25 MeV) es considerada como la energía de referencia para fotones, por tanto es conveniente introducir la respuesta TL relativa con la energía, del material TL expuesto a fotones de energía E, normalizada con respecto a la respuesta TL del material irradiado con rayos γ de ^{60}Co . Por tanto, la respuesta relativa con la energía se define como:

$$RER = \frac{S(E)}{S(E)_{^{60}\text{Co}}} \quad (1.42)$$

Debido a que la mayoría de los DTL están compuestos de diferentes elementos, la relación que determina el coeficiente másico de absorción de energía [14] está dado por:

$$\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_{DTL} = \sum_i \left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_i w_i \quad (1.43)$$

Donde $\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_i$ es el coeficiente másico de absorción de energía del i-ésimo elemento y w_i es su fracción en peso.

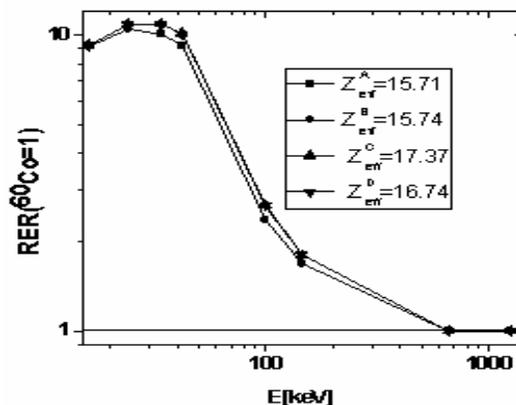


Figura 1.18 Respuesta relativa a la energía calculada de las preparaciones: A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B) NaCl:CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366), C) NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D) NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126, con sus respectivos números atómicos efectivos.

La figura 1.18 exhibe la respuesta relativa como función de la energía calculada para las preparaciones A, B, C y D.

1.13 Métodos para evaluar los parámetros cinéticos

Existen diversos métodos para determinar los parámetros cinéticos E, s y b. En este trabajo se eligieron los siguientes:

1. Deconvolución de la curva de brillo en picos de brillo ,
2. Método de levantamiento inicial,
3. Método de la forma del pico.

por la relativa simplicidad de sus ecuaciones.

A continuación se definirá cada uno de estos métodos, se explicará brevemente como se calculan los parámetros cinéticos y finalmente se mencionarán las características generales de los picos de brillo de acuerdo al orden de la cinética.

1.13.1 Deconvolución de las curvas de brillo

La deconvolución de las curvas de brillo para el análisis individual de los picos de brillo ha sido ampliamente utilizada desde 1980 y se han propuesto funciones para ajustar los picos de brillo experimentales, y encontrar los parámetros cinéticos asociados a cada pico de brillo [35]. A continuación se presentan las aproximaciones de las ecuaciones de los modelos de cinética para primer (ec.1.44), segundo (ec.1.45) y orden general (ec.1.46), que están en función de la intensidad (I_M) y temperatura máxima (T_M) de un pico de brillo, además de los factores de frecuencia, la deducción de estas ecuaciones se encuentra en el apéndice B de este trabajo.

$$I(T) = I_M \exp \left[1 - \frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} - \frac{T^2}{T_M} \exp \left[\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} \right] (1 - \Delta) - \Delta_M \right] \quad (1.44)$$

$$I(T) = 4I_M \exp \left[\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} \right] \left[\frac{T^2}{T_M^2} (1 - \Delta) \exp \left[\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} \right] + 1 + \Delta_M \right]^{-2} \quad (1.45)$$

$$I(T) = I_M (b)^{\frac{b}{b-1}} \exp \left[\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} \right] \left[(b-1)(1 - \Delta) \frac{T^2}{T_M^2} \exp \left[\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} \right] + Z_M \right]^{\frac{-b}{b-1}} \quad (1.46)$$

Donde;

$$\Delta_M = \frac{2kT_M}{E}, \quad \Delta = \frac{2kT}{E}, \quad Z_M = 1 + (b-1)\Delta_M$$

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \exp \left(\frac{E}{kT_M} \right) \quad (1.47)$$

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} \exp \left(\frac{E}{kT_M} \right) \quad (1.48)$$

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{Z_M} \exp\left(\frac{E}{kT_M}\right) \quad (1.49)$$

Las ecuaciones 1.44, 1.45 y 1.46 están en función de la intensidad máxima y temperatura de un pico de brillo, i.e. son los datos de alimentación para un programa de computo o una hoja de cálculo, el valor de la energía de activación (E) y el de orden de la cinética (b) se obtiene al ajustar las ecuaciones a los datos experimentales, los factores de frecuencia se calculan con las ecuaciones 1.47, 1.48 y 1.49 para un primer, segundo y orden general. El método de deconvolución es una herramienta de análisis ampliamente aplicada para la obtención de los parámetros cinéticos E , s y b de una curva de brillo.

Sin embargo los valores de los parámetros de atrapamiento obtenidos por este método no son siempre aceptados. Los valores obtenidos con deconvolución son de menor importancia en dosimetría, pero de importancia en la investigación de los mecanismos básicos de la termoluminiscencia. La naturaleza de s aun no es muy bien comprendida. En el caso de una cinética de primer orden se conoce que el valor de s debe ser del orden de la frecuencia de la vibración de la red 10^{13} s^{-1} , mientras que en el caso de una cinética de orden general tiene un papel de factor pre-exponencial que no puede separarse del valor de n_0 . Cuando se tienen valores confiables de E y s obtenidos de otros métodos (levantamiento inicial, decaimiento isotérmico, etc.) pueden ser usados en la deconvolución.

Por lo tanto el establecimiento de un análisis por deconvolución como una herramienta independiente para investigación de TL, necesita algunos criterios de confiabilidad y aceptabilidad para la obtención de los parámetros de atrapamiento [36].

1.13.2 Método de levantamiento inicial

Este método es utilizado para determinar la energía de activación de un pico individual y es independiente del orden de la cinética [22], además de ser válido sólo para temperaturas $T_c \leq 0.1T_M$, donde T_M es la temperatura que corresponde a la intensidad máxima del pico de brillo. En la parte inicial del pico la rapidez de cambio en la población de trampas ocupadas es muy pequeña, esto se muestra en la figura 1.19;

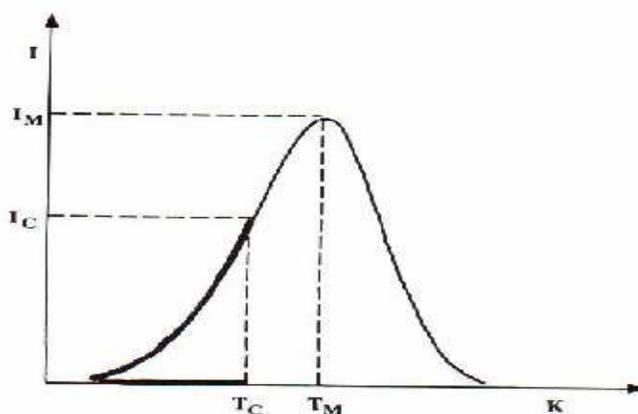


Figura 1.19 Pico de brillo y parámetros del método de levantamiento inicial [22].

La figura 1.19 muestra un pico de brillo, y en la parte inicial de bajas temperaturas se puede suponer que la concentración de electrones atrapados es constante y la dependencia con la temperatura es despreciable.

Con esta suposición la intensidad termoluminiscente tiene la siguiente forma:

$$I \propto \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \quad (1.50)$$

tomando logaritmos en ambos miembros de la ecuación 1.50 se tiene que;

$$\log I \propto -\frac{E}{k} \frac{1}{T}, \text{ y graficando esta relación se obtiene una línea recta con pendiente}$$

$$m = -\frac{E}{k} \text{ encontrando así el valor de la energía de activación para esta trampa,}$$

donde k es la constante de Boltzman. Se supone que el factor de frecuencia s permanece igual a todas las temperaturas y que no hay traslape de los picos de brillo pertenecientes a diferentes niveles de atrapamiento [22]. Este es un método efectivo para la determinación de la energía de activación, sin algún conocimiento del factor de frecuencia s . Es importante mencionar que el valor de la energía de la trampa, calculado con este método, es menor que el valor obtenido con deconvolución ya que se sobreestima el valor de E debido a eventos no radiativos, y además no toma en cuenta la eficiencia luminiscente [37].

Habiendo obtenido el valor de la energía de activación, sólo resta conocer el valor del factor de frecuencia y éste puede ser calculado con las ecuaciones 1.47, 1.48 y 1.49 para una cinética de primer, segundo y orden general, respectivamente.

1.13.3 Método de la forma del pico y ecuación de Chen

Grossweiner [38] usó el método de la forma del pico de brillo para calcular la energía del ancho de trampa y el factor de frecuencia, pero se requiere que los picos de brillo tengan una forma regular i.e. sin hombros o picos satélites.

Los parámetros que definen este método son ω , τ y δ que dependen de la temperatura máxima, del pico de brillo; donde

T_M : temperatura que corresponde a la intensidad máxima del pico de brillo,

T_1, T_2 : temperaturas en los lados izquierdo y derecho de la T_M del pico,

$\tau = T_M - T_1$: es la mitad del ancho en el lado de baja temperatura del pico,

$\delta = T_2 - T_M$: es la mitad del ancho que tiende hacia la caída o bajada del pico,

$\omega = T_2 - T_1$: es el ancho total,

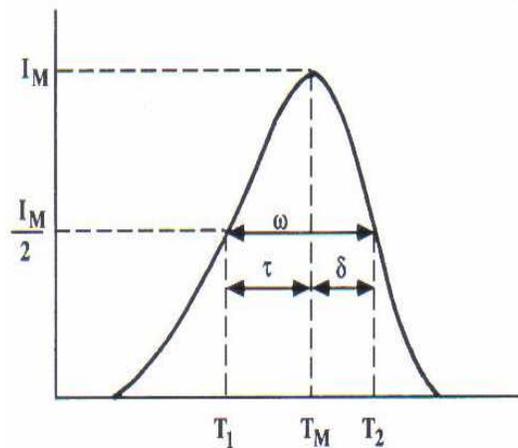


Figura 1.20 Pico de brillo y parámetros del método de la forma del pico [22].

La figura 1.20 muestra un pico de brillo indicando los parámetros δ , τ y ω .

Los valores de ω , τ y δ servirán para conocer el valor del factor geométrico μ que tiene la siguiente expresión:

$$\mu = \frac{\delta}{\omega} \quad (1.51)$$

Si, $\mu = 0.42$ se tiene una cinética de primer orden, y si $\mu = 0.52$ corresponde a una cinética de segundo orden.

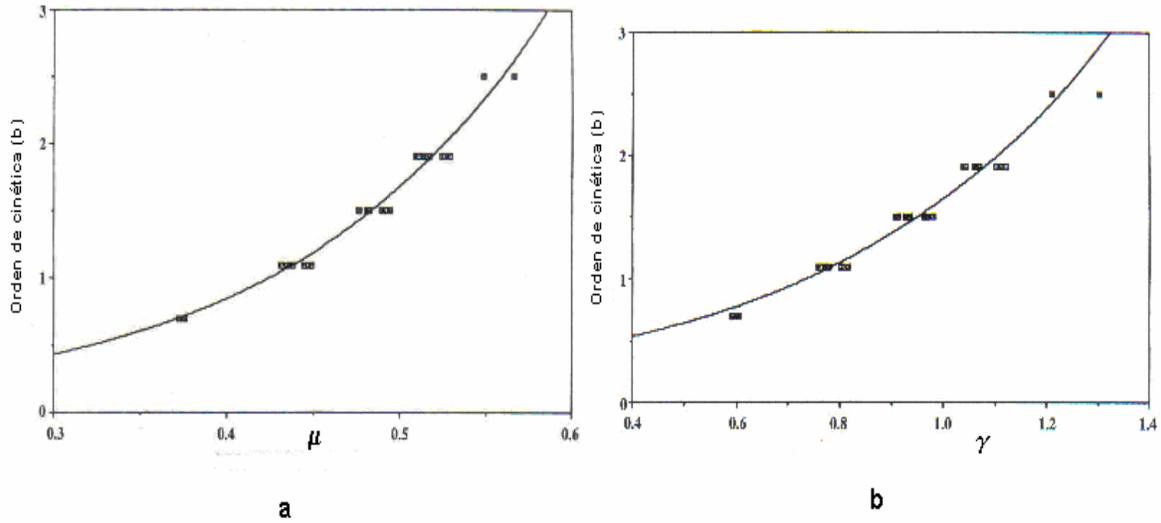


Figura 1.21 Orden de la cinética como función a) del factor geométrico μ y de γ [14].

La figura 1.21 a) presenta la relación entre el factor geométrico μ y el orden de la cinética, y la b) presenta la grafica en la cual Balarin [39] proporciona el valor del orden de la cinética b como función de $\gamma = \frac{\delta}{\tau}$.

Chen [40] obtuvo expresiones para evaluar la energía de activación en el intervalo 0.1 - 2.0 [eV] y los factores pre-exponenciales entre 10^5 y 10^{13} [s⁻¹], este método no hace uso de procesos iterativos ni aproximaciones numéricas y no se necesita algún conocimiento del orden de la cinética.

La ecuación de Chen está dada por:

$$E_{\alpha} = c_{\alpha} \left(\frac{kT_M^2}{\alpha} \right) - b_{\alpha} (2kT_M) \quad (1.52)$$

donde α puede ser τ o ω y b_{α} y c_{α} tienen las siguientes expresiones:

$$\begin{aligned} b_{\tau} &= 1.58 + 4.2(\mu - 0.42), & c_{\tau} &= 1.51 + 3.0(\mu - 0.42), \\ b_{\delta} &= 0, & c_{\delta} &= 0.976 + 7.3(\mu - 0.42), \\ b_{\omega} &= 1.0, & c_{\omega} &= 2.52 + 10.2(\mu - 0.42), \end{aligned}$$

Para encontrar el orden de la cinética con este método sólo se requiere encontrar el valor de la intensidad máxima del pico de brillo (I_M) y el valor medio ($I_M/2$), posteriormente se hace la proyección del valor medio de la intensidad máxima hasta que intersecte al pico de brillo en sus dos extremos y finalmente se hace la proyección de esos puntos sobre el eje x, donde sus coordenadas son: (T_M, I_M) , $(T_1, I_M/2)$, $(T_2, I_M/2)$. La energía de activación puede calcularse a partir de la ecuación 1.52, y el valor del factor de frecuencia puede ser calculado con las ecuaciones 1.47, 1.48 y 1.49 para un primer, segundo y orden general, respectivamente.

1.14 Características de picos de brillo con cinéticas de primer y segundo orden

Cinética de primer orden

- Los picos de brillo son antisimétricos.
- La forma de los picos de brillo dependen de la rapidez de calentamiento.
- Para una rapidez de calentamiento fija, la forma y la temperatura del pico de brillo son independientes de la concentración inicial de electrones atrapados n_o .
- El valor de n_o depende de la dosis.
- Las curvas TL obtenidas para algún valor de n_o , pueden ser sobrepuestas para diferentes n_o multiplicándolas por un factor apropiado.
- Un pico de brillo decae exponencialmente a una temperatura constante.

Cinética de segundo orden

- Un pico de brillo es casi simétrico.
- Para una rapidez de calentamiento dada, las formas de los picos dependen de la concentración inicial de los portadores de carga.
- Los picos de brillo con diferentes concentraciones iniciales de cargas atrapadas no pueden ser superpuestos por un factor multiplicativo.
- Los picos de brillo obtenidos para diferentes valores de n_0 tienden a superponerse a altas temperaturas, en la parte final de la curva de brillo.
- Un incremento de n_0 produce un decrecimiento en la temperatura del pico.
- El decaimiento isotérmico de un pico de segundo orden es hiperbólico.

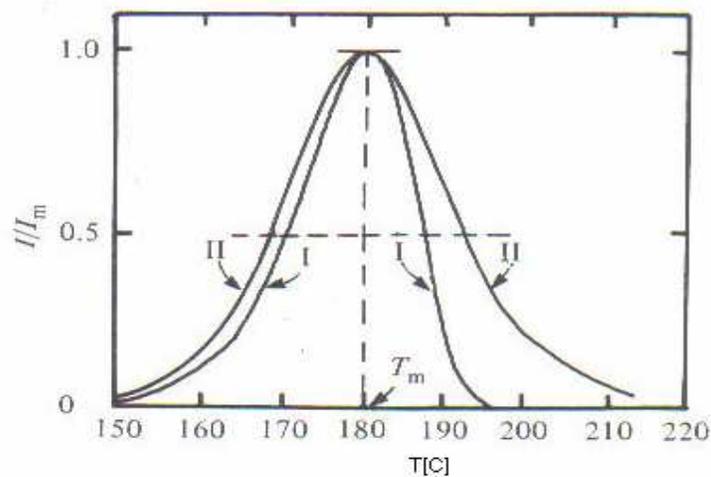


Figura 1.22 Picos de brillo normalizados I) primer orden II) segundo orden [27].

La figura 1.22 exhibe los picos de brillo con una cinética de primer y segundo orden, mostrando las diferencias en sus estructuras.

Finalmente una curva de brillo puede ser analizada en varios sentidos dependiendo de las características experimentales usadas, es decir; rapidez de calentamiento, dosis, tasa de dosis, tratamientos térmicos previos, etc.

Este análisis puede ser general o se puede llevar a cabo para un sólo pico, para algunas curvas sólo se analiza el pico de mayor intensidad TL, también conocido como pico dosimétrico.

1.15 Modelo de Boer para el centro F

En esta sección se analizará el modelo de Boer. La importancia de este modelo se debe a la analogía que se establece entre un centro F y un electrón dentro de un pozo de potencial cuadrado finito y que puede ser resuelto con la ecuación de Schrödinger para conocer los probables estados energéticos del electrón [18]. Además de que esta ecuación es útil en la descripción de las propiedades y la energía de átomos, moléculas etc.

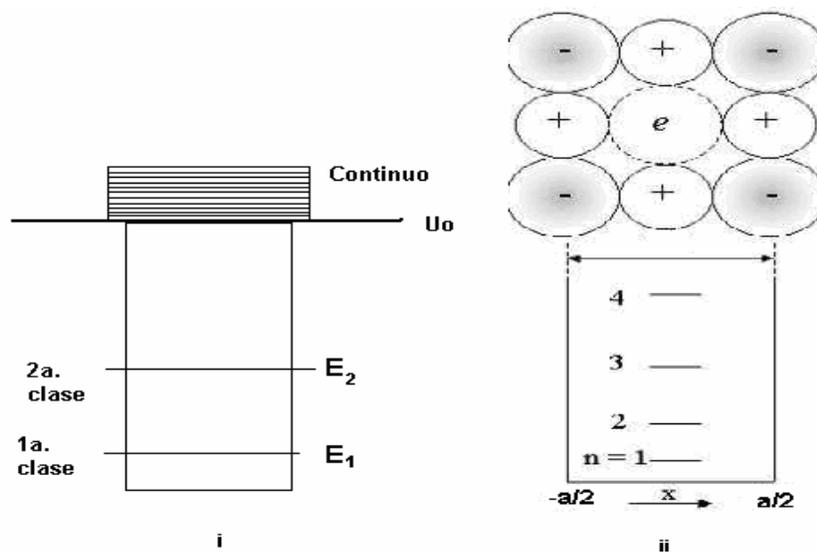


Figura 1.23 Modelo del pozo de potencial de Boer para el centro F, i) pozo de potencial, ii) diagrama del modelo de Boer para un centro F [18].

La figura 1.23 i) muestra un esquema de un pozo de potencial, y la 1.23 ii) el diagrama del centro F, en ausencia del ion negativo.

El cálculo de los niveles de energía del centro F se reduce a encontrar los valores propios de la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo. Se hará la analogía con un pozo de potencial con ancho a en la dirección positiva x , y se resolverá de manera similar, para ello se dividirá el pozo de potencial en tres regiones. La ecuación de Schrödinger para este modelo está dada por [18]:

$$\bar{\nabla}^2 \Psi + \frac{2m}{\hbar^2} (E - U_0) \Psi = 0 \quad (1.53)$$

con la siguiente condición de frontera:

$$U(x) = \begin{cases} U_0, & \text{para } |x| > a/2, \\ 0, & \text{para } |x| < a/2 \end{cases}$$

Las soluciones de la ecuación de Schrödinger para el modelo de Boer son las siguientes:

para la primera clase:

$$\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2} \tan(\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2}) = \sqrt{ma^2(U_0 - E) / 2\hbar^2} \quad (1.54)$$

y para la segunda clase:

$$-\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2} \cot(\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2}) = \sqrt{ma^2(U_0 - E) / 2\hbar^2} \quad (1.55)$$

La deducción de las ecuaciones 1.54 y 1.55 se encuentra en el apéndice C de este trabajo. Los valores del radio iónico y la energía de red para el NaCl son: $a=0.281\text{nm}$ y $U_0=8.0\text{ eV}$ [41]. Las curvas de estas funciones y valores de energía se encuentran en el capítulo 3, sección 3.10.2.

1.16 Concentración de centros F y ecuación de Smakula

El número de centros F N_F se puede calcular a partir de la relación de Smakula [43], dada por:

$$N_F f = 1.29 \times 10^{17} \frac{n}{(n+2)^2} \alpha W \quad (1.56)$$

donde;

n : es el índice de refracción del NaCl,

α : es el coeficiente de absorción [cm^{-1}], con lo que se obtiene un valor límite del número mínimo de centros por unidad de volumen que es posible detectar.

Utilizando como valores típicos $f = 1$ (intensidad del oscilador máxima), $n = 1.65$, (índice de refracción del NaCl a 300 nm), $W \sim 0.1$ [eV] (semi-ancho de la banda de absorción F), teniendo un espesor de la muestra de 0.3 mm se obtiene aproximadamente un valor de $N_F \sim 10^{14}$.

1.16.1 Curvas de coloración

Las curvas de coloración muestran la evolución del crecimiento de la concentración de los defectos formados en función de la dosis, y presentan tres etapas características [44].

a) Primera etapa: Rápido crecimiento de la concentración de centros F, i.e. atrapamiento de halogenuros intersticiales por los defectos pre-existentes, vacancias catiónicas, dipolos, y agregados bipolares.

b) Segunda etapa: Saturación de la primera etapa, la cual puede aproximarse con una línea recta.

Después de la saturación (población de trampas) la coloración es pequeña, se forman intersticiales que constituyen el núcleo para la formación de cúmulos intersticiales, por lo tanto la segunda etapa es una etapa de nucleación.

c) Tercera etapa: Sólo se presenta a altas dosis, hay un incremento en la concentración de centros F.

A medida que la dosis aumenta la cantidad de centros de nucleación estables crece y el atrapamiento adicional de intersticiales de estos centros trae como consecuencia la tercera etapa.

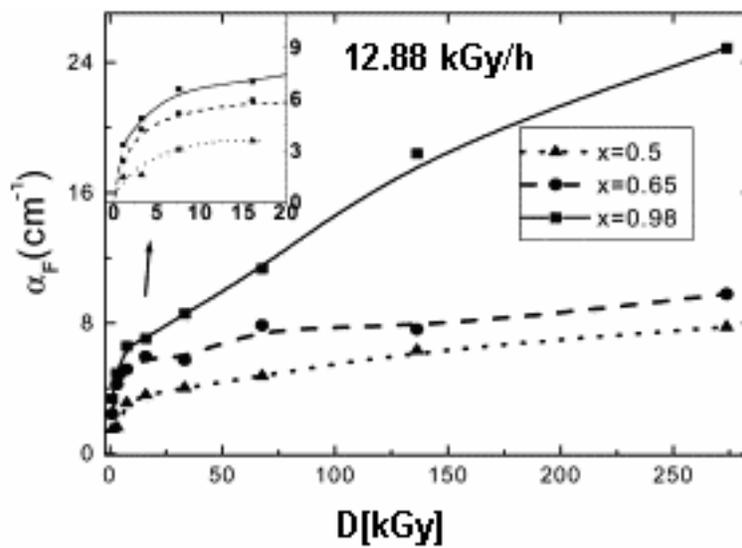


Figura 1.24 Curva de coloración del $\text{KCl}_x \text{KBr}_{1-x} : \text{Pb}^{2+}$ mostrando las tres etapas de coloración: primera etapa 1.07- 3 kGy, segunda 3-7.5 kGy y la tercera inicia en 7.5 kGy [45].

La figura 1.24 exhibe las tres etapas de una curva de coloración, de un cristal mixto, donde se observa el incremento en el nivel de saturación de la primera etapa y el alargamiento de la segunda y finalmente la aparición de la tercera.

Capítulo 2

Desarrollo experimental

En este capítulo se describirán las técnicas, tratamientos e instrumentación utilizados para determinar las curvas de brillo y bandas de absorción F de las preparaciones analizadas en este trabajo.

2.1 Crecimiento de las preparaciones

Las preparaciones utilizadas en la realización de este trabajo son cristales de $\text{NaCl}:\text{XCl}_2\text{MnCl}_2$ ($\text{X}=\text{Ca},\text{Cd}$) con dimensiones $6\times 5\times 0.3\text{mm}^3$, en dos diferentes concentraciones, y fueron producidas en el laboratorio de cristales por el grupo de propiedades ópticas del IFUNAM. El crecimiento de los cristales se llevó a cabo siguiendo la técnica de Czochralsky [46] en una atmósfera de 300 Torr de argón seco para evitar la contaminación por agua, oxígeno y radicales OH presentes en el aire que pudieran afectar la solubilidad y la precipitación de impurezas. Se llevó a cabo un análisis por absorción atómica para determinar las partes por millón [ppm] de iones impureza en cada cristal; mediante el cual se obtuvieron los resultados presentados en la tabla 2.1.

Preparaciones	
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$	B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$
C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$	D) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$

Tabla 2.1 Cristales y la concentraciones de dopantes.

2.2 Dosimetría utilizada y fuentes de radiación

2.2.1 Dosímetro de Fricke

Para obtener la tasa de dosis de los irradiadores Gammacell 200 y Gammabeam 651PT en la región de irradiación se utilizó el dosímetro químico Fricke. Este dosímetro está compuesto de una solución de 0.001 M * de FeSO_4 y 0.8 M* de H_2SO_4 y se prepara con agua tridestilada. Al ser irradiado se producen iones férricos Fe^{3+} . El cambio en el número de iones férricos entre una muestra irradiada y una no irradiada induce un cambio en la densidad óptica (DO) de las muestras en el intervalo de 40 a 400 Gy y es proporcional a la dosis, la relación tiene la siguiente expresión: $D = 278(DO)$ Gy en H_2O [47].

Las irradiaciones de las preparaciones A, B, C y D con fotones gamma se llevaron a cabo utilizando los irradiadores;

1. Gammabeam 651 PT,
2. Gammacell 200.

En la sección 2.2.1.1 y 2.2.1.2 respectivamente se indican sus actividades y tasas de dosis. El experimento de respuesta relativa como función de la energía se realizó en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ), utilizando las siguientes fuentes de radiación;

3. Irradiador gamma experimental, con tasa de dosis 0.08 kGy/h,
4. Fuente ^{137}Cs , con tasa de dosis 1.5986 Gy/h,

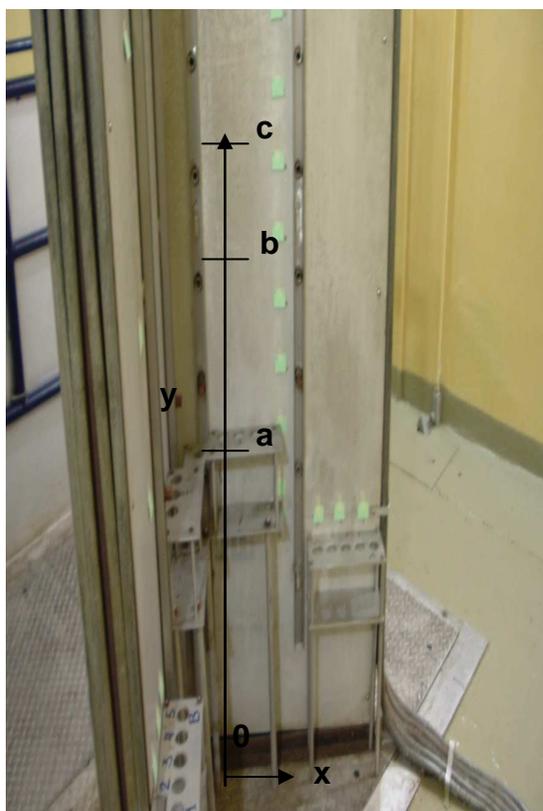
Las tasas de dosis del irradiador gamma y la fuente de ^{137}Cs fueron medidas en Enero del 2007.

M*: molar

5. Tubo de rayos X, en la sección 2.2.1.3 se indicaran las especificaciones operacionales de este tubo.

2.2.1.1 Gammabeam 651 PT

Este irradiador está cargado con material radiactivo de ^{60}Co fabricado por la compañía MDS Nordion Internacional Inc. y es propiedad del Instituto de Ciencias Nucleares de la UNAM. Los lápices del material radiactivo se componen de ensambles de pastillas de ^{60}Co . La distribución de las fuentes es en forma de L. En cada modulo independiente se pueden acomodar dos fuentes, esto permite el cambio en la tasa de dosis. La actividad de las fuentes era de 81.71 *kCi* el 1 de Marzo de 2007. A continuación se muestran las posiciones a, b, y c dentro de la cámara del irradiador, donde se colocaron las muestras para ser irradiadas.



Posición	x [cm]	y [cm]	tasa de dosis [kGy/h]
a	33	50	4.153
b	33	70	2.405
c	33	100	0.563

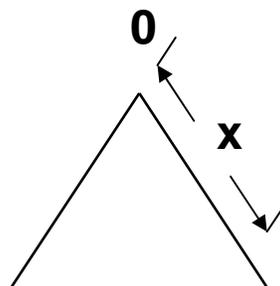


Figura 2.1 Ubicación de las preparaciones en el irradiador.

En la figura 2.1 se muestra la fotografía de la posición de las muestras dentro de la cámara de irradiación, en la parte derecha una tabla con las coordenadas $\langle x, y \rangle$ que indican la tasa de dosis en las posiciones utilizadas.

x=0 [cm]	y=33[cm]	medidas desde el vértice
	altura	kGy/h
	45	13.50
	45	13.60
	50	13.10
	60	11.40
	70	6.70
	80	3.30
	90	2.10
	100	1.30
	110	1.00
	120	0.70
	130	0.50
	140	0.40
	150	0.30

Tabla 2.2 Rapidez de dosis como función de la altura.

2.2.1.2 Gammacell 200

Este irradiador está cargado con ^{60}Co y es del tipo Gammacell 200 fabricado por la compañía Atomic Energy of Canada Limited, y es propiedad del Instituto de Ciencias Nucleares de la UNAM, consta de 24 fuentes de ^{60}Co colocadas en un blindaje de plomo, con una actividad de 3649 [Ci] en octubre de 1967. Las muestras a irradiar se colocan en una cavidad cilíndrica de 8.8 cm de diámetro y 14 cm de altura, ver figura 2.2, que está montada sobre un émbolo de acero inoxidable que sube y baja accionado por motor eléctrico. Las fuentes están ubicadas en un círculo concéntrico a la cavidad. La unidad tiene controles para subir y bajar el émbolo manualmente o automáticamente fijando el tiempo de exposición.

Dado que las fuentes de ^{60}Co no se pueden cambiar de posición, la dosis depende únicamente del tiempo de irradiación si los dosímetros son colocados en la misma posición.

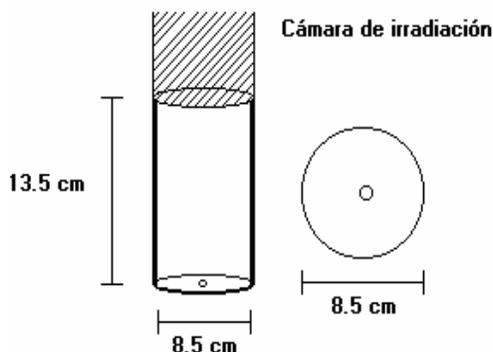


Figura 2.2 Esquema del embolo ubicado dentro del irradiador gammacell 200.

La figura 2.2 presenta las características del embolo dentro del irradiador donde se colocan las muestras para irradiar, la tasa de dosis cuando se realizaron los experimentos fue de 0.66 Gy/min y las muestras se colocaron en la parte central de la cámara de irradiación. Dado el modelo del irradiador Gammacell 200, no se puede recargar y por tanto la actividad disminuye de acuerdo a la relación $A(t) = A_0 \exp[-\lambda t]$; donde $A_0 = 3649\text{Ci}$ es la actividad inicial (de fabricación) y $\lambda = 0.13 \text{ años}^{-1}$ (constante de decaimiento para el ^{60}Co) al 30 de Abril del 2009 la rapidez de dosis era de 0.23 Gy/min.

La irradiación de las muestras en los irradiadores Gammabeam 651PT y Gammacell 200 fueron llevadas a cabo en aire, bajo condiciones de equilibrio de partícula cargada (ECP)[†] dentro de una caja de lucita de $2.5 \times 5.8 \text{ cm}^2$ con paredes de 0.5 cm de espesor (ver figura 2.3).

[†] Véase apéndice A

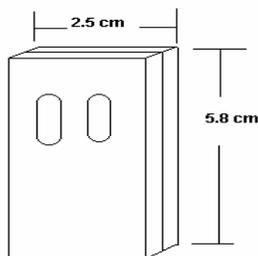


Figura 2.3 Esquema del depósito donde se irradiaron las preparaciones.

La figura 2.3 presenta un esquema del depósito de lucita donde se colocaron las preparaciones, con sus dimensiones.

2.2.1.3 Capas hemirreductoras (CHR)

Una capa hemirreductora (CHR) se define como el espesor de material necesario para reducir la intensidad de un haz de radiación electromagnética incidente a la mitad. De la ecuación 1.6 se tiene que $I(x)/I_0 = 1/2 \Rightarrow x = CHR$, por lo tanto $CHR = \ln 2 / \mu$. Por ejemplo, para un haz de fotones de ^{60}Co la capa hemirreductora en hormigón es 6.6 cm y en plomo 1.24 cm.

2.2.1.4 Rayos X

En la irradiación de las preparaciones a diferentes energías (ver tabla 2.3) se utilizó un tubo de rayos X modelo Phillips MCN321 con blanco de tungsteno.

Potencial [kV]	E [keV]	Espesor de las capas hemirreductoras (CHR) [mm]
30	16	0.370 Al
50	24	1.025 Al
80	35	2.970 Al
100	42	5.025 Al
200	100	1.690 Cu
250	145	3.200 Cu

Tabla 2.3 Calidad de los rayos X usados para la irradiación de las preparaciones

En la tabla 2.3 se presentan los valores de potencial eléctrico del tubo generador de rayos X, la energía de los fotones y el espesor de las capas hemirreductoras (CHR) que para este caso fueron de aluminio y cobre.

Las muestras se colocaron en un contenedor de plexiglas con ocho orificios ver figura 2.4, que se cubrió con una película de mylar de un espesor $0.475 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

El kerma** en aire fue medido usando una cámara de ionización tipo PTW-1152 localizada a 100 cm de la fuente de irradiación. El campo de irradiación tiene un diámetro de 8.7 cm. Los dosímetros fueron colocados en la misma posición que la cámara de ionización para la irradiación.

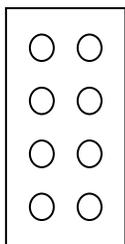


Figura 2.4 Contenedor de los cristales para la irradiación con rayos X.

Los tratamientos térmicos y la lectura de la respuesta TL de las muestras irradiadas se realizaron en el laboratorio secundario del ININ, que es el mismo que se describirá en la sección 2.3.

2.3 Tratamientos térmicos

En todos los experimentos realizados las preparaciones se calentaron en una mufla a 773 K durante una hora, después se colocaron en un bloque de cobre a temperatura ambiente con el fin de disolver cualquier dipolo complejo y también cualquier fase de precipitación que pudiera estar presente en los cristales.

** Véase apéndice A

Las preparaciones se irradiaron dentro de los dos días siguientes al tratamiento térmico, la lectura se llevó a cabo un día después de la irradiación.

2.4 Instrumentación

1. Lector TL,
2. Espectrofotómetro UV-vis.

2.4.1 Lector termoluminiscente y lectura de las muestras

Se utilizó un lector termoluminiscente marca Harshaw modelo 3500 con atmósfera de nitrógeno. La lectura de las preparaciones en el lector TL se realiza de la siguiente manera. Se coloca la muestra previamente irradiada en la plancheta del lector TL con las siguientes condiciones:

- rapidez de calentamiento: $\beta = 2$ K/s,
- intervalo de calentamiento: T=300-673 K.

Se abre la llave de salida de nitrógeno para generar la atmósfera inerte, se verifica en la pantalla de la computadora que efectivamente el N₂ este alimentando el lector TL y se enciende, y durante la lectura se genera un archivo de datos de la respuesta TL como función de la temperatura con una incertidumbre de 1×10^{-4} [C] después se espera a que la plancheta se enfrié hasta tener temperatura ambiente y se repite este proceso para otro dosímetro termoluminiscente (DTL).

2.4.2 Espectrofotómetro UV-vis y lectura de las muestras

Se utilizó un espectrofotómetro UV-vis Cary-100 SCAN con un intervalo de longitud de onda entre 190-900 nm, que permite medir de 0.1- 3.50 unidades de absorbancia con una incertidumbre de 1×10^{-2} nm.

En el intervalo de 900 a 350 nm se utiliza una lámpara de luz UV y de 350 a 190 nm se utiliza una lámpara de luz visible, con una resolución de $\lambda = 2nm$. Se coloca la muestra previamente irradiada en la placa metálica (porta muestra), ver figura 2.5, especificando el intervalo de lectura de 900 a 190 nm y la creación de un archivo en Excel con los datos de absorbancia como función de longitud de onda que generan el espectro de absorción.

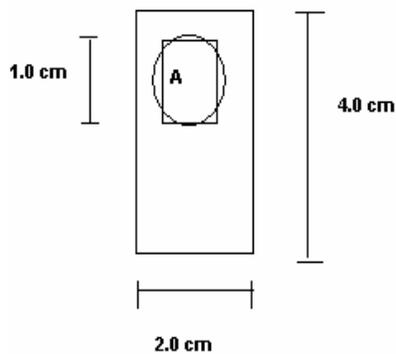


Figura 2.5 Placa metálica donde se localiza el cristal dentro del espectrofotómetro UV-vis, se señala con A la ubicación de la preparación

Capítulo 3

Resultados y discusión

Este capítulo presentan los resultados experimentales de las propiedades termoluminiscentes del material $\text{NaCl}:\text{XCl}_2:\text{MnCl}_2$ ($\text{X}=\text{Ca},\text{Cd}$) cuyas muestras fueron expuestas a radiación gamma a bajas temperaturas y a temperatura ambiente; nitrógeno líquido (77 K), hielo seco (200 K), agua congelada (263 K) y ambiente (300 K), esto se realizó con el objetivo de conocer si se presentaba algún cambio en la estructura de las curvas de brillo (número de picos, ancho, intensidad), en el orden de la cinética o en la respuesta TL como función de la dosis absorbida, además de tratar de dilucidar cuales son los mecanismos responsables de la generación de las curvas de brillo.

En este trabajo, se analizaron las siguientes características termoluminiscentes;

1. Curvas de brillo como función de la dosis,
2. Reproducibilidad del sistema termoluminiscente,
3. Medida del desvanecimiento de la señal TL en función del tiempo,
4. Respuesta TL como función de la dosis absorbida,
5. Análisis de linealidad y no-linealidad e índices $f(D)$ y $g(D)$,
6. Respuesta relativa con la energía,
7. Métodos para evaluar los parámetros cinéticos,
8. Efecto de la temperatura de irradiación en la respuesta TL,
9. Análisis de la respuesta TL como función de la temperatura de irradiación,

Además de una medida óptica con espectroscopia UV-vis.

10. Bandas de absorción F, modelo de Boer y curvas de coloración como función de la tasa de dosis.

La deconvolución de las curvas de brillo se realizó usando el programa MINUIT, Computer Centre Program Library D-506, Geneva: CERN /1977, F. James, M. Ros, disponible en línea: <http://consult.cern.ch/writeups/minuit>. y la precisión del ajuste fue probada con la figura de merito [53].

Temperatura de irradiación de 300K

3.1 Curvas de brillo como función de la dosis.

En esta sección se presentan las curvas de brillo de las preparaciones A, B, C y D irradiadas a diferentes dosis, esto tiene por objetivo conocer el efecto de la dosis en la estructura de la curva de brillo, i.e. intensidad, altura, ancho y número de picos además de conocer cual es el pico de brillo dosimétrico.

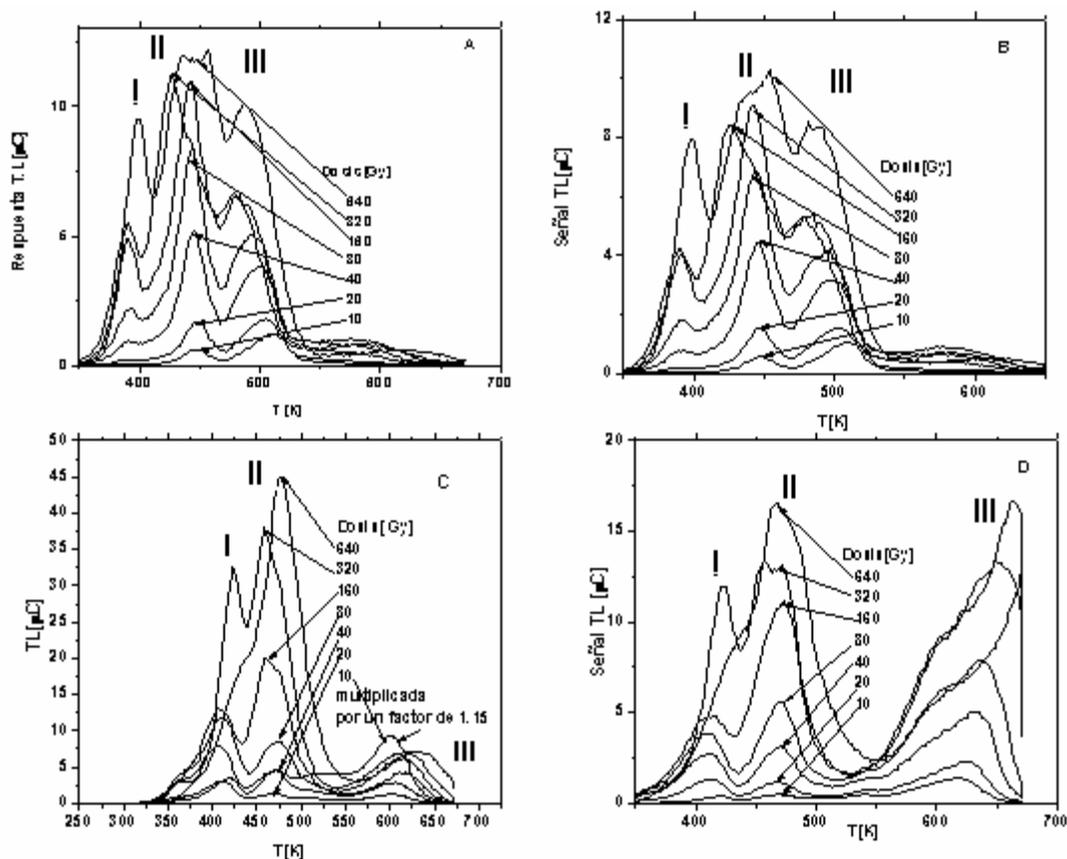


Figura 3.1 Crecimiento de las curvas de brillo como función de la dosis expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 0.66 Gy/min donde; A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaClCaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366),C)NaCl:CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366), D)NaCl:CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

Las figura 3.1 presenta el efecto de la dosis sobre las curvas de brillo entre 10 y 640 Gy para cada preparación.

La estructura de las curvas de brillo de las preparaciones A y B presenta tres picos de brillo localizados en 380, 450 y 500 K, pero conforme se incrementa la dosis estos crecen manteniendo la misma forma hasta una dosis de 160 Gy, el pico de brillo localizado cerca de 450 K exhibe un hombro a una dosis de 320 Gy, y éste aumenta mostrando el inicio de un nuevo pico a una dosis de 640 Gy, exhibiendo una doble estructura, lo cual revela dos niveles de atrapamiento muy cercanos, mientras que el pico ubicado a 500 K aumenta su intensidad en función de la dosis.

La curva de brillo de la preparación C irradiada a una dosis de 10 Gy se multiplica por un factor de 1.15, mostrando el inicio de tres picos de brillo localizados en 420, 470 y 610 K, con un hombro en 510 K, el pico de mayor intensidad TL está ubicado en 470 K y mantiene la misma estructura hasta la dosis de 160 Gy, el pico ubicado en 420 K a la dosis de 320 Gy disminuye su ancho y aumenta su altura, finalmente el pico principal o de mayor intensidad exhibe un hombro sobre la parte ascendente.

La curva de brillo de la preparación D presenta tres picos localizados en 410, 470 y 620 K, y mantiene la misma estructura hasta una dosis de 160 Gy, posteriormente el pico localizado en 410 K disminuye su ancho, el pico ubicado en 470 K crece y exhibe dos picos muy pequeños lo cual revela dos trampas muy cercanas a una dosis de 320 Gy, después aumenta su ancho en la dosis de 640 Gy, y ya no se observan estos picos.

3.1.1 Efecto de la dosis sobre las curvas de brillo con diferentes concentraciones de iones impureza.

En esta sección se presentan las curvas de brillo de las preparaciones A, B, C y D en las dosis 10 y 640 Gy, siendo las dosis mínima y máxima utilizadas en este trabajo, con el objetivo de conocer el efecto sobre los diferentes iones impurificadores y a su vez en la estructura de las curvas.

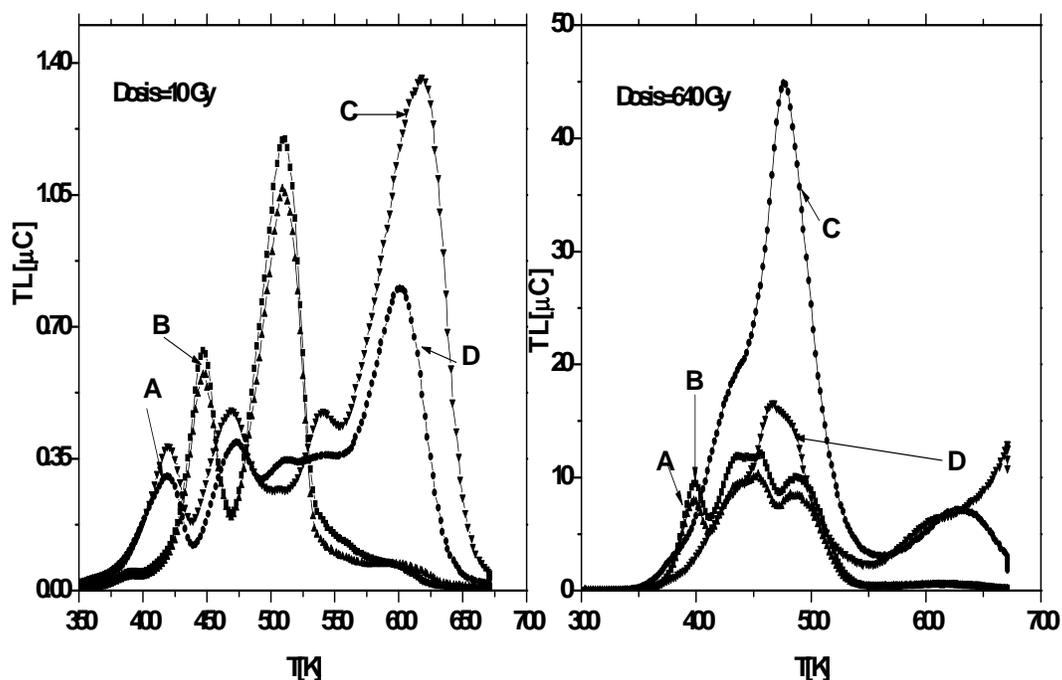


Figura 3.2 Efecto de la dosis en las preparaciones A, B, C y D expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 660 Gy/h donde;
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$
C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$, D) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$

La figura 3.2 presenta el efecto de la dosis en la respuesta TL de las preparaciones A, B, C y D irradiadas a 10 y 640 Gy.

Las curvas de brillo de las 4 preparaciones muestran 3 picos característicos, las curvas C y D exhiben un pico a altas temperaturas en 600 y 625 K, respectivamente a una dosis de 10 Gy, la curva de brillo de la preparación C presenta el pico de mayor intensidad localizado a 625 K, y la curva de brillo de la preparación A tiene el pico de menor intensidad, ubicado en 425 K. A la dosis de 640 Gy el pico de brillo de mayor intensidad es el de la preparación C, se ubica aproximadamente a 500 K, además que se presenta un cambio en la estructura de la curva de brillo, esto indica que la combinación de iones de cadmio y manganeso es más eficiente en la formación de trampas para los portadores de carga.

3.1.2 Breve discusión de los posibles mecanismos responsables de la formación de las curvas de brillo a una temperatura de irradiación de 300 K.

Un mecanismo posiblemente responsable de la estructura de estas curvas de brillo es la recombinación de halógenos intersticiales térmicamente liberados de sus trampas o de cualquiera de los centros F o de vacancias aniónicas cerca de los iones de Ca^+ y Mn^+ inducidos por radiación. También es posible sugerir que el electrón liberado del centro F por excitaciones térmicas es capturado por centros complejos i.e. Ca, causando un aumento en la absorción de Ca^- , o posiblemente los electrones y huecos estén atrapados en centros contenidos en la impureza [48].

Los centros F tienen una estabilidad térmica hasta 440 K, esto indica que la migración térmica del par F-H es inhibida por los iones impureza y esto es consistente con los resultados de Hodgson et al. [48] los cuales muestran que los centros F son formados cerca de las impurezas donde los intersticiales son estables. Las impurezas divalentes producen una disminución de la respuesta TL y suponiendo que los picos de brillo son debidos a la recombinación de intersticiales de cloro con agregados de centros F se puede prever el siguiente escenario: en muestras dopadas el calentamiento dispersa las impurezas después de la irradiación y los cristales contendrán agregados de intersticiales atrapados en las impurezas y la respuesta TL estará determinada por la disponibilidad de intersticiales para la recombinación con los centros F, si algunos intersticiales no llegan a estar disponibles para la recombinación por la unión con impurezas entonces la respuesta TL resultará ser más pequeña [49].

Durante la lectura TL de las preparaciones, la energía de recombinación es transferida a la impureza la cual puede participar en la respuesta TL. En este escenario la respuesta TL es modificada por los defectos inducidos por la tensión y/o esfuerzo en la red la cual puede causar un desplazamiento del pico y también por las propiedades de relajación del ion impureza el cual influenciará el tamaño de la señal. Las impurezas divalentes tienen un efecto estabilizador sobre la curva de brillo [50].

3.2 Reproducibilidad de los sistemas termoluminiscentes

La reproducibilidad en la señal TL de los dosímetros termoluminiscentes (DTL) es una característica importante por la información almacenada por éste. La evaluación de esta propiedad mediante el proceso de irradiación, calentamiento y lectura, permitirá conocer si el lector TL, los dosímetros o alguna otra fuente en el procedimiento produjo las variaciones en la respuesta TL.

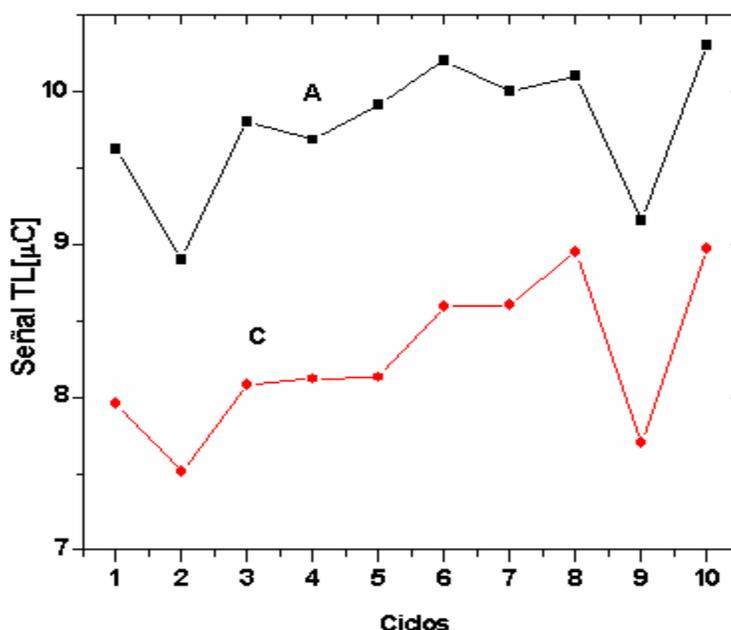


Figura 3.3 Respuesta TL como función de los ciclos de lectura, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 0.66 Gy/min donde;
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$.

La figura 3.3 presenta la lectura TL como función de los ciclos de lectura de las preparaciones A y C. Las respuestas TL de las preparaciones A y C, después de 10 ciclos de medición exhiben diferencias porcentuales de 1.60 y 3.70% con respecto a la primera lectura TL.

Ciclo	TL [μC] Prep. A	TL [μC] Prep. C	σ_{ir}	\overline{X}_{ir}	$\sigma_{ir} / \overline{X}_{ir}$
1	9.62	7.96	1.17	8.79	0.13
2	8.90	7.51	0.98	8.21	0.12
3	9.80	8.08	1.22	8.94	0.14
4	9.68	8.12	1.10	8.90	0.12
5	9.91	8.13	1.26	9.02	0.14
6	10.20	8.59	1.14	9.40	0.12
7	10.00	8.60	0.99	9.30	0.11
8	10.10	8.95	0.81	9.53	0.09
9	9.15	7.7	1.03	8.43	0.12
10	10.30	8.9	0.94	9.64	0.10
\overline{X}_{ic}	9.76	8.26		IVL	0.01
\overline{X}_c	9.01			IVS	0.12
σ_{ic}	0.45	0.50		IVD %	11.78
σ_c	0.47				

Tabla 3.1 Lecturas TL como función de los ciclos de lectura y valores de los índices de variabilidad.

La tabla 3.1 presenta las lecturas TL como función de los ciclos de lectura y los valores de los índices de variabilidad del sistema, lector y detector, además de las desviaciones estándar y promedios con respecto a las columnas ($\overline{X}_{ic}, \sigma_{ic}$) y renglones ($\overline{X}_{ir}, \sigma_{ir}$). Por lo tanto;

$$IVD = 100\sqrt{(IVS)^2 - (IVL)^2} = 100\sqrt{(0.12)^2 - (0.01)^2} = 0.11$$

El valor del índice de variabilidad del detector es 0.11, lo que indica que una mejor reproducibilidad puede obtenerse con el uso individual de factores de sensibilidad asociados a cada dosímetro. Este análisis no se llevo a cabo con las preparaciones B y D, por las variaciones entre los valores iniciales y finales de las lecturas que fueron del 211 y 85.34 % respectivamente.

3.3 Medida del desvanecimiento de la señal TL como función del tiempo.

La estabilidad de la señal TL en función del tiempo es una característica necesaria en un dosímetro termoluminiscente. Si al paso del tiempo entre la irradiación y la lectura se presenta un desvanecimiento de la señal TL, se perderá información, por lo tanto en esta sección se analizará este fenómeno a partir de:

1. Curvas de brillo a diferentes tiempos de almacenamiento,
2. Respuesta TL como función del tiempo,
3. Cálculo de la energía de activación durante el desvanecimiento de la señal TL a partir de la deconvolución de las curvas de brillo,
4. Modelo teórico del desvanecimiento de la señal TL como función del tiempo.

Estos análisis se realizan con el objetivo de conocer cuantitativamente la pérdida de la señal TL como función del tiempo.

3.3.1 Curvas de brillo a diferentes tiempos de almacenamiento

En esta sección se presentan las curvas de brillo de las preparaciones A, B, C y D a diferentes tiempos de almacenamiento, con el objetivo de analizar el desvanecimiento de la señal TL como función del tiempo.

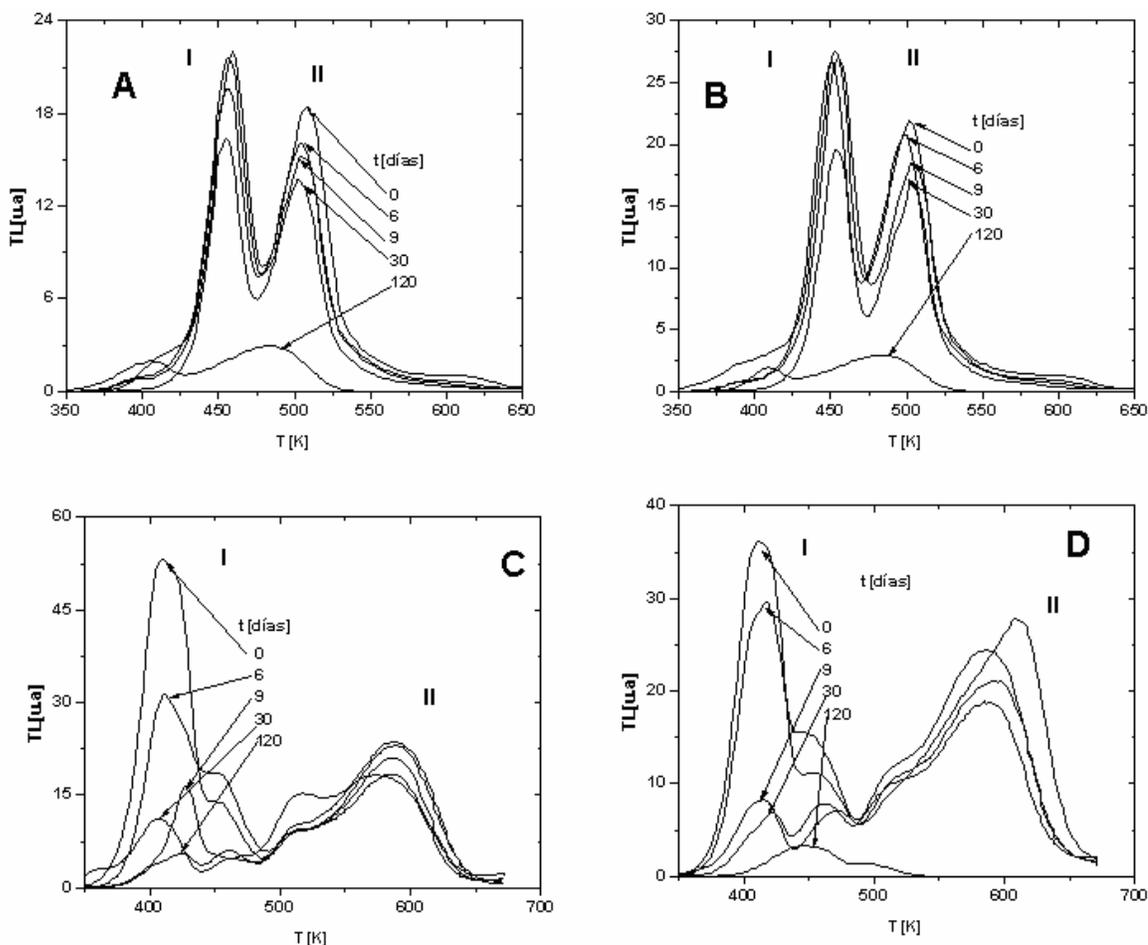


Figura 3.4 Desvanecimiento de las curva de brillo como función del tiempo, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 0.66 Gy/min y una dosis de 5 Gy donde;
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$
C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$, D) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$.

La figura 3.4 presenta las curvas de brillo de las preparaciones A, B, C y D a diferentes tiempos de almacenamiento, $t=0, 6, 9, 30$ y 120 días.

Las curvas de brillo de las preparaciones A y B exhiben dos picos localizados en 459 y 509 K, se observa una disminución en la señal TL, en todos los tiempos de almacenamiento, manteniendo su estructura i.e. dos picos de brillo habiendo transcurrido 30 días, al final del periodo de almacenamiento de 120 días sólo se observan dos picos localizados en 400 y 475 K.

Las curvas de brillo de las preparaciones C y D presentan dos picos de brillo ubicados alrededor de 410 y 590 K, el primero con un hombro en la parte descendente de alta temperatura, el segundo con un hombro en la parte ascendente de baja temperatura, al final del periodo de almacenamiento de 120 días, en la curva de brillo de la preparación C se observa una disminución en la intensidad TL del primer pico y un aumento del segundo, este comportamiento puede ser atribuido a una transferencia de carga producida por desvanecimiento térmico, mientras que la curva de brillo de la preparación D sólo exhibe un pico localizado a 450 K con un hombro.

Las curvas de brillo de la figura 3.4 no exhiben la misma estructura i.e. número de picos, intensidad TL, etc. que las presentadas en la figura 3.1 porque fueron irradiadas a diferentes dosis.

3.3.2 Respuesta TL como función del tiempo.

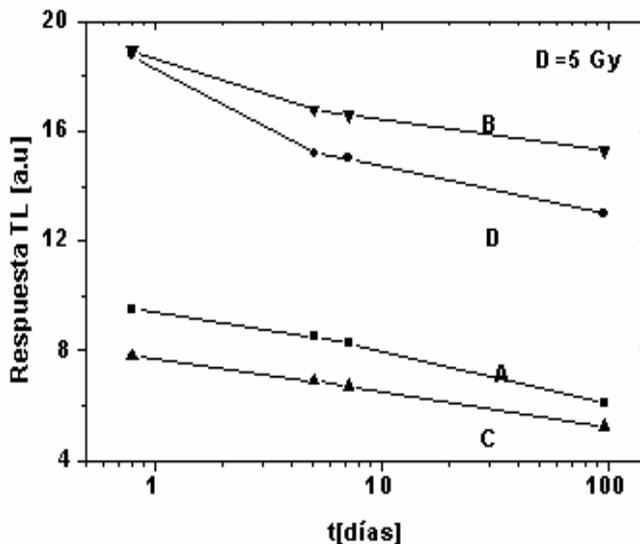


Figura 3.5 Respuesta TL en función del tiempo, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 0.66 Gy/min y una dosis de 5 Gy donde;
A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La figura 3.5 muestra el desvanecimiento de la respuesta TL en función del tiempo para las preparaciones A, B, C y D.

El porcentaje de desvanecimiento de la señal TL al final del periodo de almacenamiento $t=120$ días para las preparaciones A, B, C y D fue de 40, 21, 37.5 y 31.5 %, respectivamente. Una posible explicación de este comportamiento, es que durante la irradiación de un dosímetro TL dos efectos compiten al mismo tiempo; atrapamiento por la continua irradiación y desatrapamiento, este último producido por el desvanecimiento a temperatura ambiente [30].

3.3.3 Cálculo de la energía de activación durante el periodo de desvanecimiento de la señal TL a partir de la deconvolución de las curvas de brillo.

Desvanecimiento t[días]	Pico 1		Pico 2		Desvanecimiento t[días]	Pico 1		Pico 2	
	T _M [K]	E [eV]	T _M [K]	E [eV]		T _M [K]	E [eV]	T _M [K]	E [eV]
Preparación A					Preparación B				
0	458.00	2.03	506.00	1.84	0	452.00	1.98	500.00	1.76
9	455.00	1.95	502.00	2.13	9	455.00	1.88	502.00	1.80
120	454.00	2.33	502.00	2.02	120	454.00	1.93	502.00	1.70

Tabla 3.2 Energías de activación y temperatura máxima de los picos 1 y 2 a diferentes tiempos de almacenamiento de las preparaciones A y B, donde;
A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

Las energías de activación de los picos de brillo de las preparaciones A y B en la tabla 3.2, se calcularon a partir de la deconvolución de las curvas de brillo. La energía de activación de los picos 1 y 2 de la preparación A aumenta, lo que indica que los picos son producidos por una distribución de trampas, mientras que las energías como función del tiempo para los picos 1 y 2 de la preparación B, se mantienen constantes, lo que evidencia que estos picos son generados por sólo una trampa [51]. Este análisis no se realizó con las curvas de brillo de las preparaciones C y D por la complejidad en su estructura a la tasa de dosis de 0.66 Gy/min y a una dosis de 5 Gy.

3.3.4 Modelo teórico del desvanecimiento de la señal TL como función del tiempo y parámetros de desvanecimiento

Las relaciones establecidas por el modelo de Kitis y Furetta [30] requieren de tres parámetros; factor de desvanecimiento (λ), factor de calibración (F_c) y área del pico principal (el de mayor intensidad TL), o de la curva de brillo los valores de λ y Φ se obtuvieron al ajustar las ecuaciones a los datos experimentales.

Preparación	A	B	C	D
$\Phi_0 [u^2]$	9.12±0.28	18.52±2.02	7.45±0.28	18.48±0.98
$\lambda [m^{-1}]$	-0.10±0.02	-0.09±0.08	-0.09±0.02	-0.05±0.03
Fc[Gy/TL]	0.07	0.03	0.08	0.03

Tabla 3.3 Parámetros de desvanecimiento donde;

A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La tabla 3.3 contiene los parámetros de desvanecimiento calculados con la expresión; $\Phi(t) = \Phi_0 \exp[-\lambda t]$ que corresponde a una cinética de primer orden.

Los parámetros Φ_0 y λ se obtienen al ajustar la función $\Phi(t)$ a los datos experimentales y exhibe el desvanecimiento de la señal TL de las preparaciones A, B, C y D como función del tiempo. Un modelo para el desvanecimiento de la señal TL como función del tiempo que tome en cuenta el orden de la cinética, no sólo servirá para realizar correcciones en la lectura de la respuesta TL, sino para identificar los mecanismos responsables de la disminución de la señal TL.

3.4 Respuesta TL como función de la dosis absorbida.

Una característica deseable en un sólido cristalino candidato a dosímetro TL es que exhiba una respuesta lineal en un amplio intervalo de dosis. El análisis de la respuesta TL como función de la dosis se inició en este trabajo a partir de 10 Gy, debido a que en un trabajo anterior [2], se había analizado este comportamiento de 1-35 Gy, a una tasa de dosis de 0.83 Gy/min, para la preparación A, encontrando un comportamiento casi lineal, en esta tesis se realizará un análisis más detallado haciendo uso de los índices de supralinealidad y superlinealidad y de la ecuación 1.35 la cual predice un comportamiento lineal-supralineal [52].

La relación 1.35 tiene la siguiente expresión:

$$M(D) = \underbrace{M_1(D) \left(1 - \exp \left[-\frac{D}{E_{01}} \right] \right)}_{1-golpe} + \underbrace{M_2(D) \left(1 - \left(1 + \frac{D}{E_{02}} \right) \exp \left[-\frac{D}{E_{02}} \right] \right)}_{2-golpes}$$

La gráfica del ajuste de esta relación a los datos experimentales, además de las curvas de 1-golpe, 2-golpes o más servirán para mostrar si una trampa tomará parte en el proceso TL después de ser activada mediante (1+2) golpes o más.

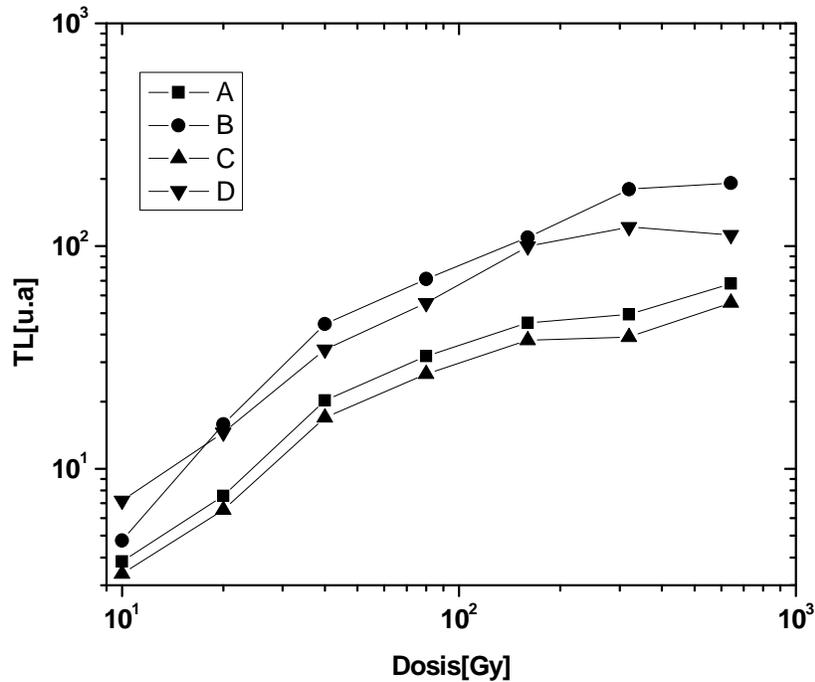


Figura 3.6 Respuesta TL como función de la dosis;
 A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
 C)NaCl: CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl: CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126).

La figura 3.6 exhibe la relación entre la respuesta TL y la dosis absorbida para cada una de las preparaciones en el intervalo 10-640 Gy.

La respuesta TL de la preparación B exhibe un comportamiento supralineal, entre 10 y 320 Gy, después de 320 y hasta 640 Gy sublineal acercándose a la zona de saturación, mientras que la respuesta TL de los materiales A, C y D exhibe una respuesta supralineal entre 10 y 80 Gy, y posteriormente sublineal.

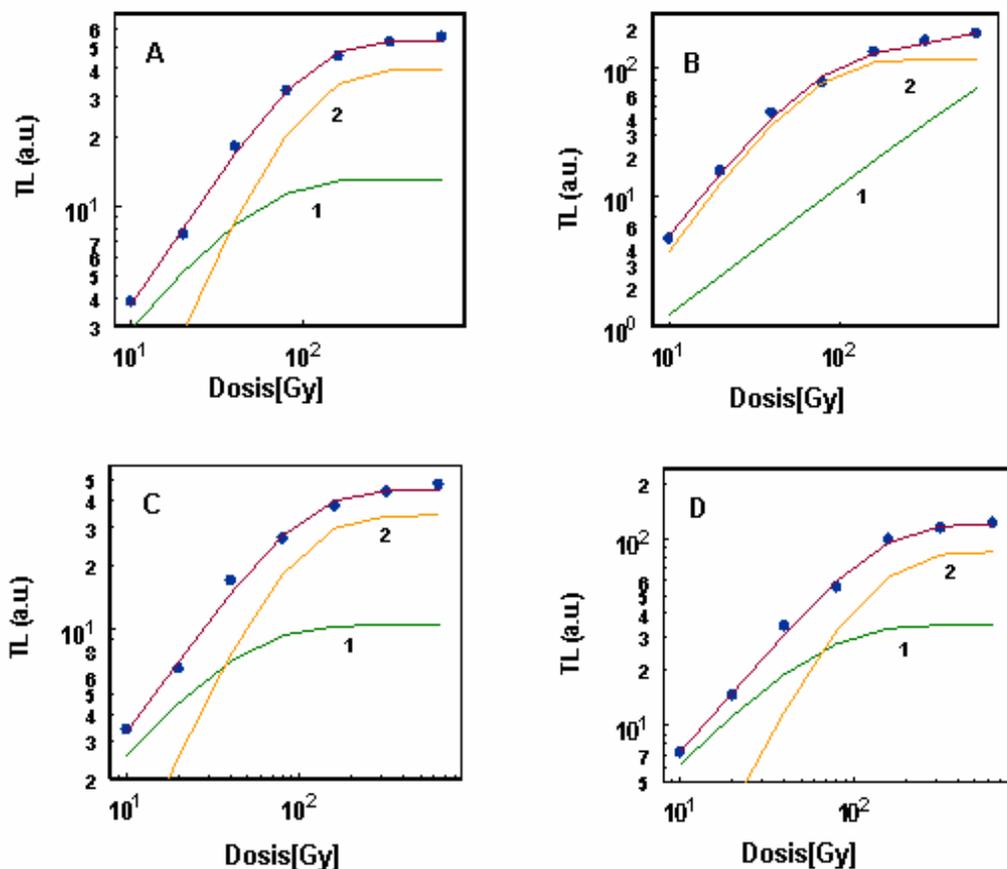


Figura 3.7 Respuesta TL como función de la dosis, las curvas 1 y 2 son los ajustes para 1-golpe y 2-golpes, A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl:CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366) C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126).

En la figura 3.7 se presenta el ajuste de la curva respuesta TL como función de la dosis para cada una de las preparaciones, usando la relación dada por la ecuación (1.35), los datos experimentales son representados por los círculos y las líneas continuas son los ajustes.

La curva etiquetada con 1 corresponde a la primera exponencial de la ecuación 1.35 la cual representa el inicio el proceso de activación de la trampa y la curva etiquetada con 2 corresponde a la segunda exponencial indicando la siguiente interacción lo que origina que esta trampa esté completamente activada para su contribución en el proceso termoluminiscente. Las curvas de las preparaciones A, C y D indican que las trampas responsables de la respuesta TL fueron activadas en dos estados.

Preparación	$M_1(D)$ [u.a]	E_{01} [Gy]	$M_2(D)$ [u.a]	E_{02} [Gy]	Coefficiente de correlación
A	13.18	39.90	39.76	45.81	0.94
B	266.80	2170.00	116.00	35.80	0.92
C	10.47	35.37	34.25	44.98	0.85
D	34.79	50.98	85.51	61.20	0.98

Tabla 3. 4 Parámetros de ajuste para las curvas respuesta TL como función de la dosis, donde; A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366) C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126).

Los valores de $M_1(D)$, $M_2(D)$, E_{01} y E_{02} son obtenidos a partir del ajuste de la ecuación 1.35 a los datos experimentales, y se presentan en la tabla 3.4, donde el modelo dado por la ecuación 1.35 tiene una discrepancia porcentual contra los datos experimentales de 21.91, 20.24, 19.78 y 9.90%, para las preparaciones A, B, C y D respectivamente.

3.5 Análisis de linealidad y no-linealidad e índices $f(D)$ y $g(D)$.

Los índices $f(D)$ y $g(D)$, están en función de la dosis, y sirven para indicar los intervalos de linealidad y no-linealidad i.e. sublinealidad, supralinealidad y superlinealidad de sustancias en estado sólido previamente irradiadas.

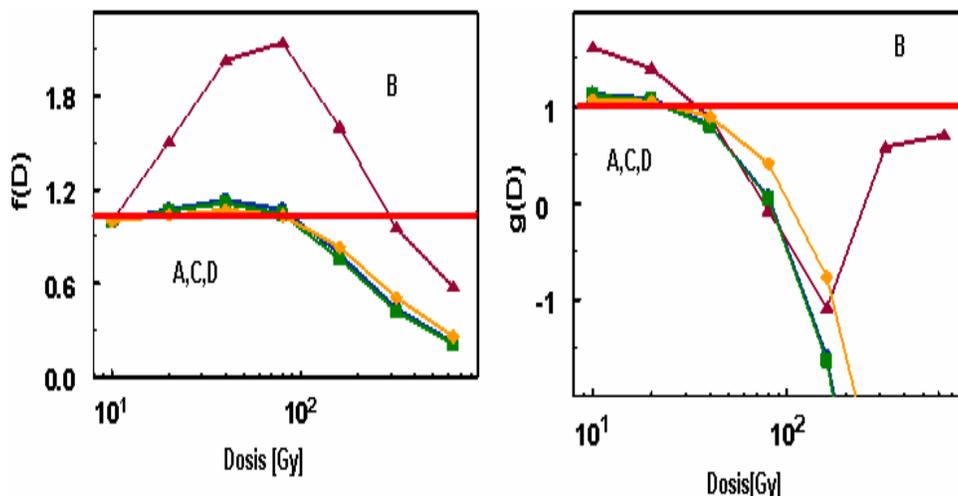


Figura 3.8 Índices $f(D)$ y $g(D)$ donde;

A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La figura 3.8 exhibe la gráfica de los índices $f(D)$ y $g(D)$ de supralinealidad y superlinealidad indicando con una línea horizontal, el valor de 1 como referencia para determinar los intervalos de linealidad, supralinealidad y superlinealidad.

Un comportamiento supralineal es exhibido por las preparaciones A, C y D entre 10 y 80 Gy, ligeramente mayor que 1, posteriormente es menor que la unidad lo que indica un comportamiento sublineal, la preparación B presenta una apreciable diferencia con una marcada supralinealidad entre 10 y 320 Gy, y después exhibe un comportamiento sublineal.

Los valores del índice $g(D)$ son mayores que la unidad, en todos los casos, lo cual indica superlinealidad, en estos materiales aparece entre 10 y 20 Gy, y conforme la dosis se incrementa, los valores de $g(D)$ son menores que 1 lo cual significa un comportamiento sublineal, y cuando se excede un valor de dosis de 100 Gy, los valores de $g(D)$ son negativos para A, C y D, y el valor del índice $g(D)$ para la preparación B aumenta cerca de un valor de 250 Gy, manteniendo un comportamiento sublineal.

3.6 Respuesta relativa como función de la energía

Los análisis de respuesta relativa como función de la energía no se llevaron a cabo con las preparaciones A, B y D debido a que no se contaba con suficientes muestras. El número atómico efectivo de la preparación C es de 17.37, un valor similar al de los huesos compactos [5][12][13], por lo tanto esto abre la posibilidad de una posible aplicación en radioterapia y/o radiodiagnóstico donde se buscan dosímetros con números atómicos efectivos cercanos a los del tejido blando, hueso, etc. Además de ser una indicación de la respuesta del material con la

energía, la comparación se hizo con respecto a aire i.e. $S(E) = \frac{\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_C}{\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_{aire}}$ donde

$$RER = \frac{S(E)}{S(E)_{^{60}Co}}$$

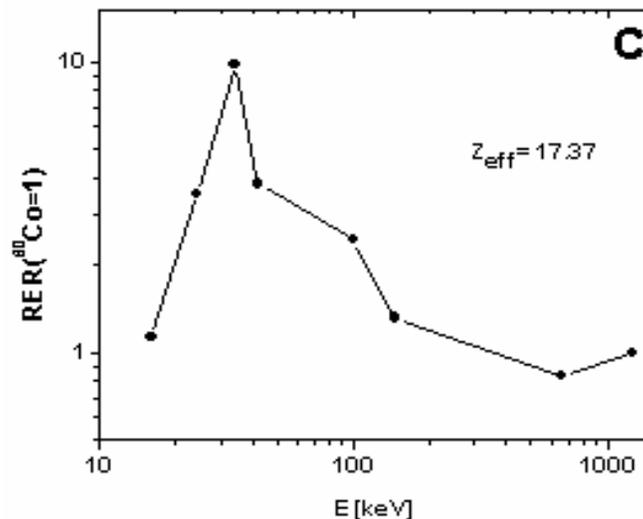


Figura 3.9 Respuesta experimental relativa como función de la energía de fotones de la preparación C, donde; C)NaCl: CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014).

La figura 3.9 presenta la respuesta experimental relativa como función de la energía de la preparación C. Para facilitar la descripción de la curva en la figura 3.9 se hará de derecha a izquierda.

La curva de la preparación C exhibe un aumento en la respuesta como función de la energía para valores en energía menores a 100 keV, en esta energía de irradiación la mayor contribución a la respuesta relativa como función de la energía del sólido está dada por el efecto fotoeléctrico, entre 30 y 50 keV se observa un aumento en la respuesta después un decrecimiento que puede ser debido a una atenuación en el dosímetro y el inicio del efecto fotoeléctrico en el material de referencia que para este caso es aire.

3.7 Métodos para evaluar los parámetros cinéticos.

En esta sección se presentarán los valores obtenidos de los parámetros cinéticos calculados con los siguientes métodos;

1. Deconvolución de las curvas de brillo,
2. Método de levantamiento inicial,
3. Método de la forma del pico de brillo.

3.7.1 Deconvolución

La deconvolución de las curvas de brillo experimentales en picos de brillo, se realiza con el objetivo de conocer el orden de la cinética y los parámetros cinéticos i.e. factor de frecuencia (s) y energía de activación (E), además de conocer cual es el mecanismo responsable de la respuesta termoluminiscente.

Para una cinética de primer orden, el área bajo los picos individuales de brillo es proporcional al número inicial de cargas atrapadas y es independiente de la rapidez de calentamiento y si el número de cargas atrapadas es proporcional a la dosis de radiación, entonces el área también es proporcional a la dosis de irradiación.

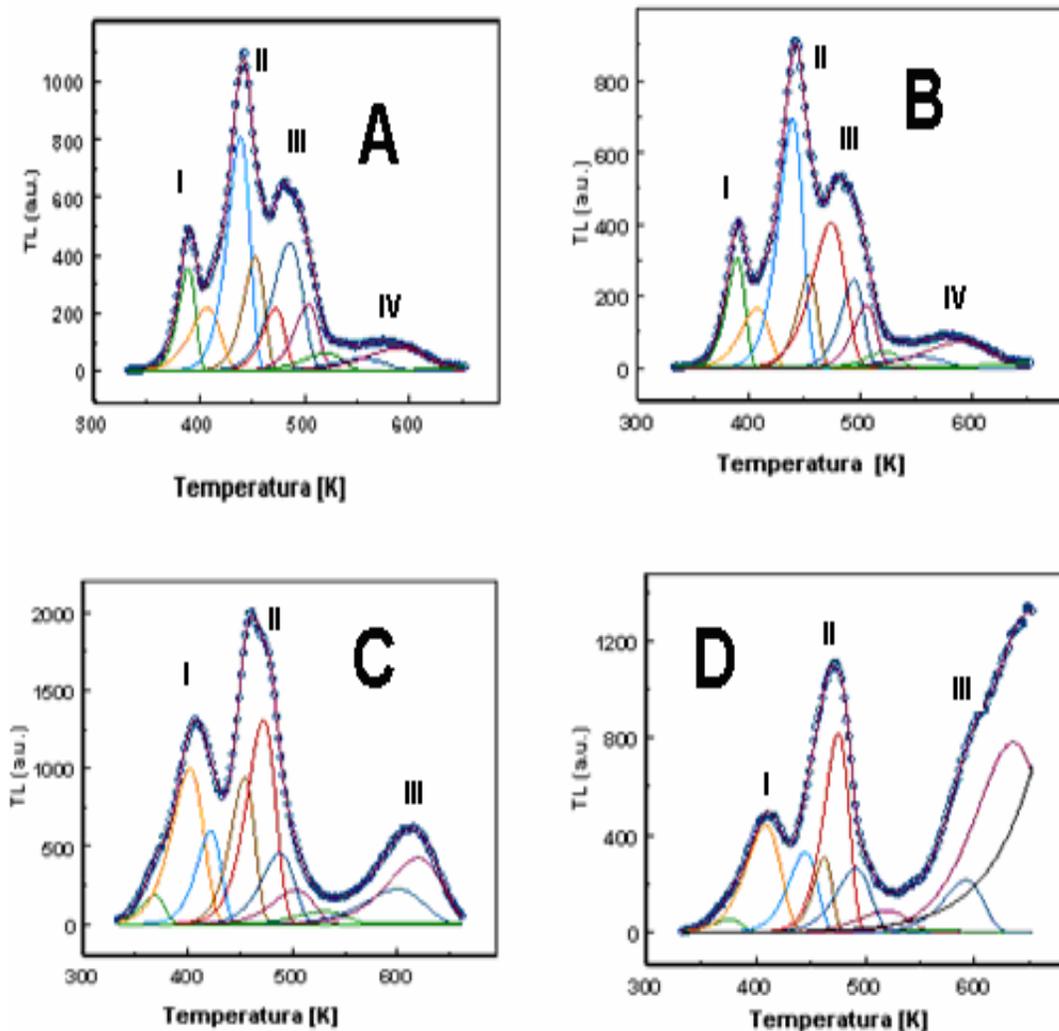


Figura 3.10 Curvas de brillo experimentales expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una dosis de 160 Gy y su deconvolución donde;
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$
C) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$, D) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$

La figura 3.10 presenta la deconvolución de las curvas de brillo experimentales en 10 picos de brillo, i.e. 10 estados de atrapamiento, el pico principal (mayor intensidad TL en este caso el II) de las preparaciones A y B, es generado por 2 trampas, mientras que los de las preparaciones C y D por cuatro trampas.

La figura de mérito en este análisis fue de: 1.49, 1.55, 1.19 y 1.26 % para las preparaciones A, B, C y D, respectivamente. Garo et al. [53] reportan que una figura de mérito menor que el 2.5% indica un buen ajuste, así la deconvolución de las preparaciones en este estudio, utilizando ecuaciones de una cinética de primer orden es adecuada y la elección del número de picos de brillo.

A	Integral	I[u.a]	T _M [K]	E [eV]	s[s ⁻¹]	B	Integral	I[u.a]	T _M [K]	E [eV]	s[s ⁻¹]
1	3716.00	326.00	389.71	1.64	5.37E+20	1	2697	92.51	367.69	0.99	8.63E+12
2	4053.00	200.00	407.82	0.99	2.46E+11	2	19500	498.60	401.63	0.90	2.55E+10
3	11110.00	741.00	439.13	1.58	2.96E+17	3	9130	300.10	421.61	1.30	5.89E+14
4	5088.00	360.00	453.49	1.79	2.03E+19	4	14160	471.00	453.96	1.53	1.72E+16
5	2910.00	200.00	472.64	1.90	3.59E+19	5	23480	656.90	471.91	1.38	8.55E+13
6	8276.00	405.00	486.13	1.41	6.00E+13	6	9235	228.10	488.10	1.30	3.36E+12
7	3456.00	210.00	503.86	1.90	1.76E+18	7	5590	109.90	503.00	1.08	7.87E+09
8	1520.00	56.40	520.00	1.21	5.94E+10	8	2493	40.96	530.17	1.00	2.65E+08
9	1415.00	38.70	554.61	1.00	9.23E+07	9	8093	112.10	600.00	1.07	8.16E+07
10	3002.00	72.70	590.00	1.00	2.33E+07	10	14050	212.60	619.56	1.25	1.28E+09
C	Integral	I[u.a]	T _M [K]	E [eV]	s[s ⁻¹]	D	Integral	I[u.a]	T _M [K]	E [eV]	s[s ⁻¹]
1	3320.00	337.00	389.71	1.58	6.74E+19	1	907.80	48.48	375.64	0.90	1.85E+11
2	2778.00	184.00	407.42	1.10	7.34E+12	2	8976.00	399.10	408.9	0.90	1.56E+10
3	9765.00	766.00	439.36	1.54	9.44E+16	3	5626.00	300.00	445.00	1.38	8.24E+13
4	3045.00	287.00	454.28	2.00	3.48E+21	4	3421.00	279.70	462.56	2.19	2.10E+23
5	7801.00	448.00	474.13	1.30	8.90E+12	5	12250.00	740.10	475.41	1.69	1.71E+17
6	3258.00	272.00	494.68	2.09	4.85E+20	6	5413.00	238.30	491.28	1.30	2.87E+12
7	2391.00	191.00	506.12	2.10	1.55E+20	7	2621.00	80.71	519.29	1.00	4.48E+08
8	878.60	49.50	522.52	1.56	1.56E+14	8	395.30	10.52	559.96	1.00	7.89E+07
9	1016.00	33.80	553.08	1.00	9.94E+07	9	5108.00	193.70	591.85	1.63	9.76E+12
10	2742.00	80.30	590.00	1.00	2.33E+07	10	25300.00	704.40	634.79	1.09	3.04E+07

Tabla 3.5 Parámetros cinéticos de las preparaciones;
A: NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B: NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
C: NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014)D: NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126) a una temperatura de 300 K.

La tabla 3.5 presenta los parámetros cinéticos E y s, además de la temperatura, e intensidad máxima de cada pico de brillo obtenido por deconvolución de las 4 preparaciones irradiadas a 160 Gy con fotones gamma de ^{60}Co .

Las columnas 1 y 7 indican la preparación correspondiente A, B, C y D y el número de picos calculados con deconvolución asociados a cada pico de brillo experimental I, II, III y IV respectivamente

La energía del ancho de trampa más profundo es para el pico de deconvolución 4 de la preparación D, el cual contribuye al pico II de la curva de brillo y tiene la mayor concentración de CdCl_2 y MnCl_2 , después el pico de deconvolución 6 de la preparación C que aporta al pico II de la curva de brillo, análogamente el pico 7 de deconvolución de la preparación A que contribuye al pico III de la curva de brillo, y por último el pico de deconvolución 4 de la preparación B, que aporta al pico de brillo II. A partir de la deconvolución de las curvas de brillo se observa que cada pico de brillo, tiene asociado varios estados de atrapamiento.

La deconvolución de las curvas de brillo en picos de brillo sólo es un método de aproximación que permite dilucidar el o los posibles mecanismos que generan una curva de brillo, hasta este momento no hay algún criterio para decidir el número exacto de picos de brillo de deconvolución impuestos en una curva de brillo, a mayor número de picos el valor de la figura de mérito disminuye. McKeever [54] propone el método experimental de calentamiento parcial de la muestra previamente irradiada para obtener la curva $T_M - T_{Detener}$ mediante el cual se puede inferir el número de trampas responsables de un pico o picos de brillo pero este método es posible que no sea muy bien aceptado.

3.7.2 Método del levantamiento inicial

El método de levantamiento inicial sirve para determinar la energía del ancho de trampa (E) de un pico de brillo, utilizando la ecuación de Arrhenius que tiene la

expresión: $I \propto \exp\left[-\frac{E}{kT}\right]$ aplicando logaritmos se obtiene $\log I = -\frac{E}{k} \frac{1}{T}$,

comparando los términos de esta ecuación con una recta de la forma $y = mx$, se tiene que la pendiente m de la recta es igual a $-E/k$, donde k es la constante de Boltzman, de esta forma se obtiene el valor de la energía de activación de una trampa.

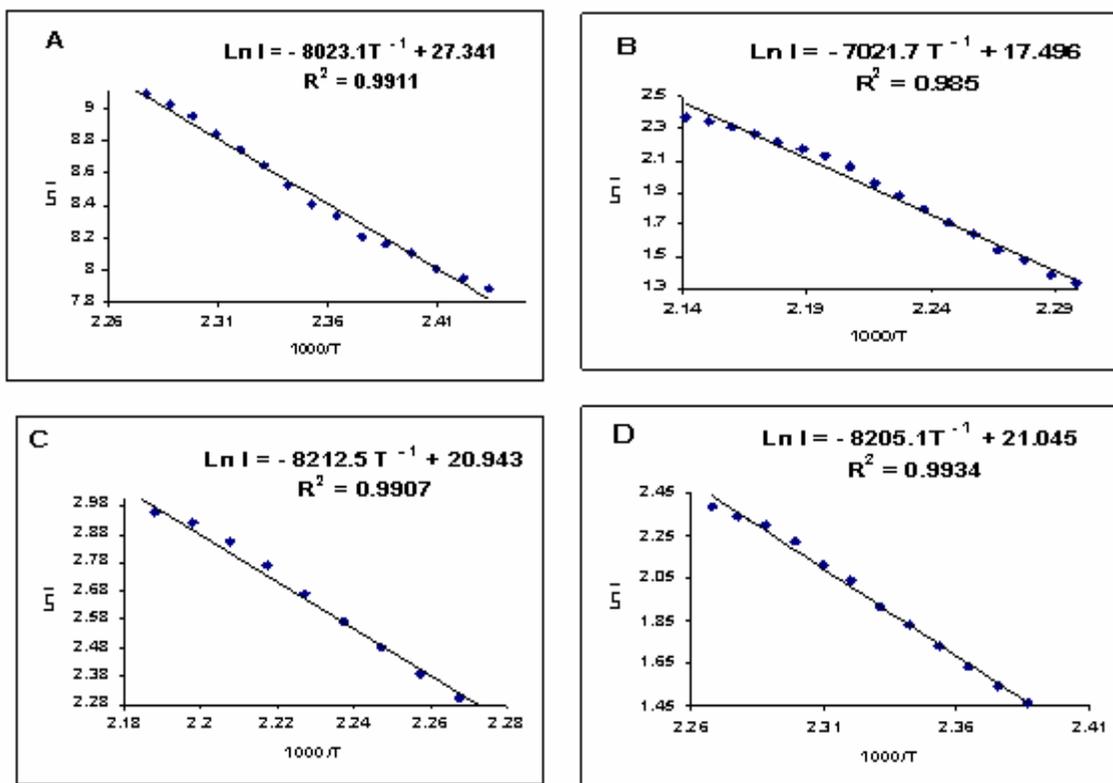


Figura 3.11 Relación log TL vs. 1000/T donde;
 A) NaCl:CaCl₂ (0.1444):MnCl₂ (0.115), B) NaCl:CaCl₂ (0.0098):MnCl₂ (0.1366)
 C) NaCl:CdCl₂ (0.00263):MnCl₂ (0.0014), D) NaCl:CdCl₂ (0.0199):MnCl₂ (0.0126)

La figura 3.11 exhibe la grafica de la ecuación $\log I \propto \frac{-E}{k} \frac{1}{T}$.

Preparación	Energía [eV]	Energía [eV]	% de variación
Método	Levantamiento inicial	Deconvolución	
A	0.68	1.58	56.96
B	0.60	1.30	53.84
C	0.70	1.30	46.15
D	0.70	1.69	58.57

Tabla 3.6 Energías de activación calculadas mediante el método de levantamiento inicial comparadas con las obtenidas a partir del método de deconvolución donde:

A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

Los valores de las energías de los anchos de trampa del pico de brillo (dosimétrico) de las preparaciones A, B, C y D calculados con este método tienen diferencias entre un 53 y un 58% con respecto a los obtenido por deconvolución debido a que no se toman en cuenta eventos radiativos [37] además que un pico de brillo puede estar conformado por varios estados de atrapamiento, y el valor de E obtenido con este método, sólo toma en cuenta la parte inicial del pico como si fuera un sólo ancho de trampa.

3.7.3 Método de la forma del pico de brillo y ecuación de Chen

El método de la forma del pico sirve para determinar el orden de la cinética (b) a

partir del factor geométrico $\mu = \frac{\delta}{\omega}$, y habiendo obtenido los valores de δ , ω o τ

se utiliza la ecuación 1.52 propuesta por Chen dada por: $E_{\alpha} = c_{\alpha} \left(\frac{kT^2}{\alpha} \right) - b_{\alpha} (2kT_M)$

para obtener los valores de la energía de activación, donde α puede ser δ , ω o τ y las ecuaciones 1.47, 1.48 y 1.49 se utilizan para calcular los factores de frecuencia para una cinética de primer, segundo y orden general, respectivamente.

En la tabla 3.7 se presentan los valores de τ , δ , ω y μ , además de la energía de activación calculada con la ecuación de Chen en función de cada uno de estos parámetros, utilizando los datos experimentales de las curvas de brillo obtenidas en la sección 3.3.1. Esto sólo se realizó para las preparaciones A y B debido a que las curvas de brillo no presentan hombros ni picos satélites, mientras que las curvas de brillo de las preparaciones C y D si los exhiben.

Pico 1													
Preparación A t [días]	I_m [u.a]	$I_m/2$ [u.a]	T_1 [K]	T_2 [K]	T_m [K]	τ	δ	ω	μ	b	E_τ [eV]	E_δ [eV]	E_ω [eV]
0	0.22	0.11	445	471	459	14	12	26	0.46	1	1.98	1.94	1.98
9	0.22	0.11	441	471	457	16	14	30	0.47	1	1.72	1.69	1.72
120	0.16	0.08	443	467	455	12	12	24	0.50	2	2.45	2.32	2.40
Preparación B t [días]													
0	0.28	0.14	437	467	453	16	14	30	0.47	1	1.69	1.66	1.69
9	0.27	0.13	441	469	455	14	14	28	0.50	2	2.08	1.99	2.05
120	0.20	0.10	440	467	453	13	14	27	0.52	2	2.30	2.14	2.23
Pico 2													
Preparación A t [días]	I_m [u.a]	$I_m/2$ [u.a]	T_1 [K]	T_2 [K]	T_m [K]	τ	δ	ω	μ	b	E_τ [eV]	E_δ [eV]	E_ω [eV]
0	0.18	0.10	487	523	509	22	14	36	0.39	1	1.31	1.19	1.28
9	0.15	0.08	481	521	504	23	17	40	0.43	1	1.31	1.30	1.32
120	0.14	0.07	481	519	502	21	17	38	0.45	1	1.50	1.50	1.51
Preparación B t [días]													
0	0.22	0.12	481	517	505	24	12	36	0.33	1	1.04	0.63	0.91
9	0.19	0.10	483	519	504	21	15	36	0.42	1	1.43	1.39	1.43
120	0.17	0.08	482	517	505	23	12	35	0.34	1	1.11	0.76	1.00

Tabla 3.7 Energía de activación y factores geométricos μ y γ de las preparaciones A y B, obtenidos para las curvas de brillo medidas para los tiempos de almacenamiento $t=0,9$ y 120 días, donde: A)NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

En la tabla 3.7 se presentan los valores de la energía de activación calculados con la ecuación de Chen y el orden de la cinética (b).

Los valores máximos de la energía de activación para ambas preparaciones fueron a un tiempo de almacenamiento de 120 días para el pico de brillo 1.

Método	Ecuación de Chen E [eV]	Deconvolución E[eV]	Método	Ecuación de Chen E [eV]	Deconvolución E[eV]
Pico 1			Pico 2		
Preparación A			Preparación A		
t [d]			t [d]		
0	1.98	2.03	0	1.31	1.84
9	1.72	1.95	9	1.31	2.13
120	2.45	2.33	120	1.50	2.02
Preparación B			Preparación B		
t [d]			t [d]		
0	1.69	1.98	0	1.04	1.76
9	2.08	1.88	9	1.43	1.80
120	2.30	1.93	120	1.11	1.70

Tabla 3.8 Energías de activación calculadas mediante deconvolución y con la ecuación de Chen donde: A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

La tabla 3.8 presenta los valores de las energías de activación calculados mediante la deconvolución de los picos de brillo y la ecuación de Chen.

Se presentan variaciones cerca del 20% entre los valores obtenidos mediante los dos métodos, esto puede deberse al hecho de que el método de la forma de pico sólo toma en cuenta el ancho y alto de un pico de brillo, sin considerar que varios estados de atrapamiento pueden ser los responsables de la formación de un pico de brillo, mientras que la deconvolución de un pico de brillo puede llevarse a cabo suponiendo que 1 o más trampas toman parte en el proceso TL.

3.8 Efecto de la temperatura de irradiación (T_{irr}) en la respuesta TL.

En la sección 3.8 se presentan los siguientes resultados experimentales:

1. Efecto de la dosis en las curvas de brillo,
2. Respuesta TL en función de la dosis absorbida,
3. Deconvolución de las curvas de brillo y parámetros cinéticos,
4. Función dosis-respuesta $f(D)$.

obtenidos a las temperaturas de irradiación de 263, 200 y 77 K.

A la temperatura de 263 K no se obtuvieron la: respuesta TL como función de la dosis y la función dosis-respuesta, porque la matriz cristalina del NaCl es higroscópica i.e. absorbe la humedad del agua y ambiente y al realizar los experimentos las preparaciones se empezaban a disolver.

Temperatura de irradiación de 263K,

3.8.1 Curvas de brillo como función de la dosis.

La estructura de las curvas de brillo puede ser modificada por los efectos de la dosis, tasa de dosis, temperatura, rapidez de calentamiento etc. En esta sección se muestra el efecto de la temperatura de irradiación sobre la estructura de las curvas de brillo como función de la dosis absorbida.

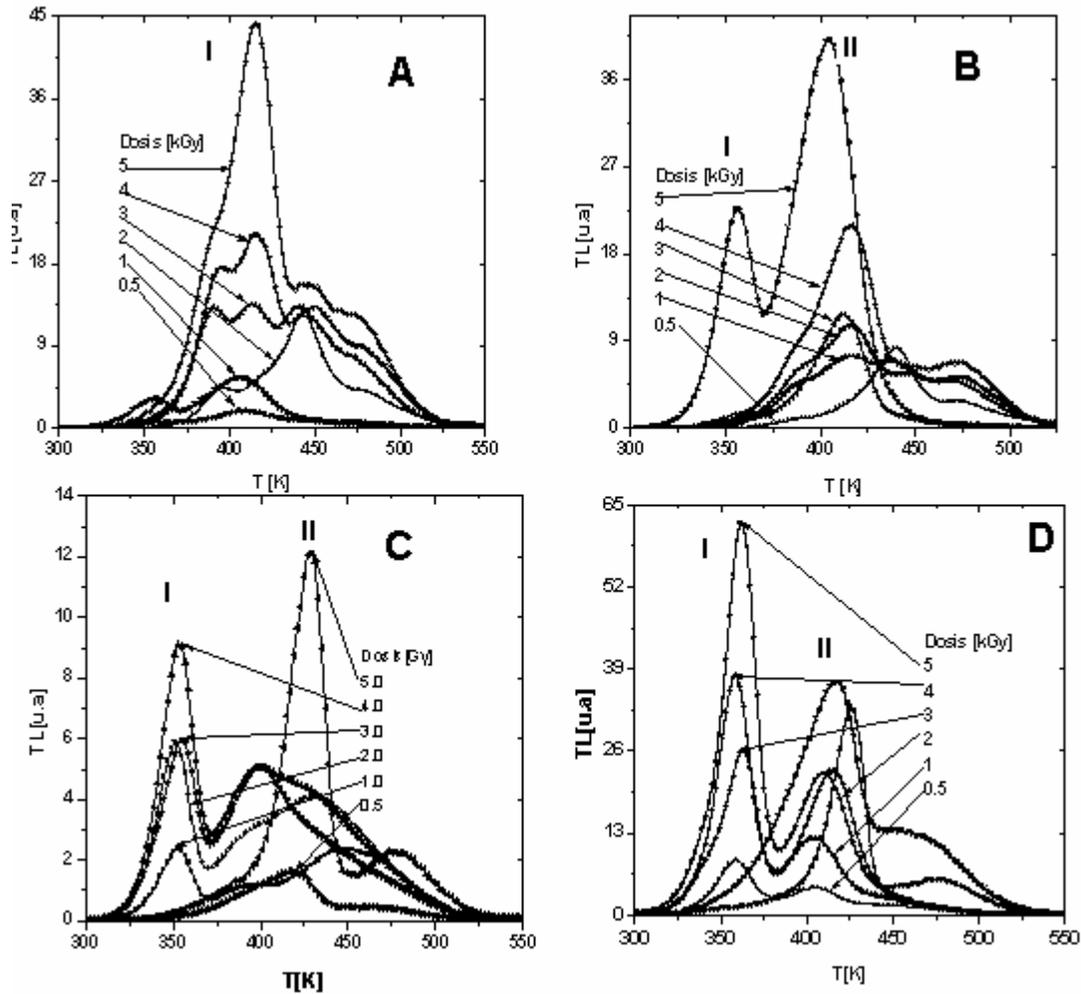


Figura 3.12 Crecimiento de las curvas de brillo como función de la dosis, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 76.70 Gy/min y a una temperatura de irradiación de 263 K, donde; A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366) C)NaCl:CaCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CaCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126).

Las curvas de brillo, de la figura 3.12 muestran el efecto de la dosis absorbida.

La curva de brillo de la muestra A exhibe dos estados de atrapamiento muy cercanos desde 350 hasta 450 K. La curva de brillo de la muestra B presenta dos picos, principal localizado en 430 K, cuando aumenta la dosis de 4.0 a 5.0 kGy, se presenta un pico a 350 K. Las curvas de brillo de la muestra C conservan la misma estructura desde la dosis de 0.5 y hasta 5.0 kGy, el pico principal esta localizado a 430 K.

Las curvas de brillo de la muestra D, presentan dos picos de brillo en todo el intervalo de dosis, y un hombro a una temperatura de 475 K y el pico principal esta localizado en 360 K.

3.8.1.1 Deconvolución

La deconvolución de las curvas de brillo en picos de brillo a diferentes temperaturas de irradiación permitirá conocer los mecanismos responsables de la respuesta TL.

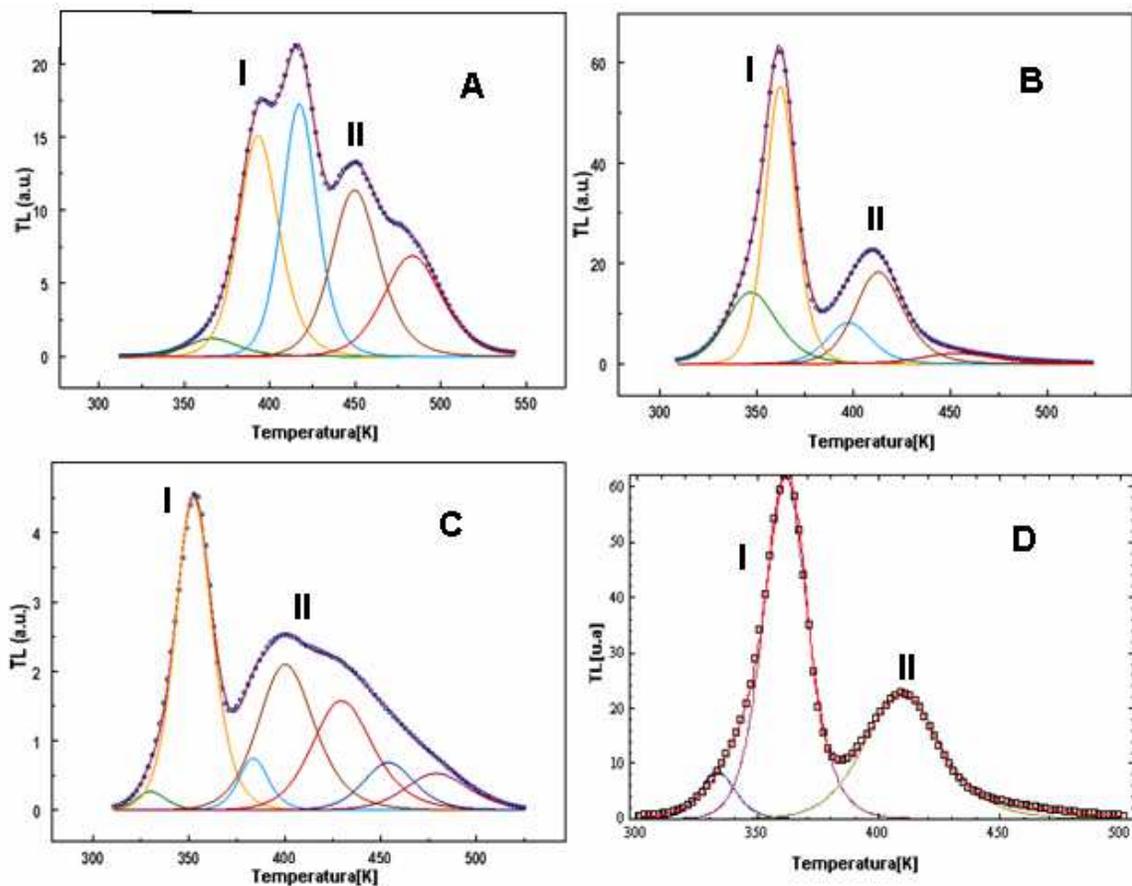


Figura 3.13 Curvas de brillo experimentales y su deconvolución, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una dosis de 2 kGy y a una temperatura de irradiación de 263 K, donde; A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B) NaCl:CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366) C) NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D) NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126).

La figura 3.13 exhibe la deconvolución de las curvas de brillo en picos de brillo.

La curva de brillo de la preparación A exhibe su pico principal o de mayor intensidad TL cerca de 400 K con dos estados de atrapamiento muy cercanos y dos picos satélite a altas temperaturas asociados con dos estados de atrapamiento, la curva de brillo de la preparación B exhibe dos picos de brillo muy simétricos asociados con cuatro estados de atrapamiento, la estructura de la curva de brillo de la preparación C presenta dos picos el primero ubicado cerca de 350 K es simétrico, pero el segundo tiene asociados 5 trampas debido a su ancho, la curva de brillo de la preparación D presenta tres estados de atrapamiento, asociados con tres picos de brillo con temperaturas máximas en: 333, 361 y 409 K. La deconvolución de las curvas de brillo experimentales en picos de brillo a una temperatura $T=263$ K, presentan una cinética de segundo orden.

A	T_M [K]	E [eV]	B	T_M [K]	E [eV]	C	T_M [K]	E [eV]	D	T_M [K]	E [eV]
1	386.00	1.14	1	347.00	1.10	1	330.00		1	333.00	1.90
2	393.00	1.67	2	362.00	2.10	2	352.50	1.60	2	361.00	1.80
3	417.20	2.10	3	397.00	1.70	3	383.60	2.23	3	409.00	1.30
4	449.50	1.83	4	412.80	1.72	4	400.00	1.36			
5	483.00	1.67	5	453.00		5	429.60	1.46			
6	573.00		6	490.00		6	454.00	1.92			

Tabla 3.9 Parámetros cinéticos de las preparaciones; A) NaCl:CaCl₂ (0.1444):MnCl₂ (0.115), B)NaCl CaCl₂ (0.0098):MnCl₂(0.1366), C) NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126) irradiadas a una temperatura de 263 K.

La tabla 3.9 presenta los valores de los parámetros cinéticos obtenidos con deconvolución de las curvas de brillo de las preparaciones A, B y C. La curva de brillo de la preparación C, es la que presenta el pico más ancho y por lo tanto tiene la mayor energía de activación.

La deconvolución de las curvas de brillo obtenidas para una temperatura de irradiación de 263 K, se llevó a cabo usando una cinética de segundo orden, esto fue porque utilizando una cinética de primer orden se necesitaba un mayor número de picos para la deconvolución, además las energías de activación resultaban ser menores que 1 eV, por esto se omitieron algunas de ellas en la tabla 3.9. Los mecanismos responsables de la respuesta TL son la recombinación y el reatrapamiento ambos igualmente probables, una diferencia de 37 K en la temperatura de irradiación produjo el cambio en el orden de la cinética. Esto nos indica que la respuesta TL depende de la temperatura de irradiación.

Temperatura de irradiación de 200 K,

3.8.2 Curvas de brillo como función de la dosis.

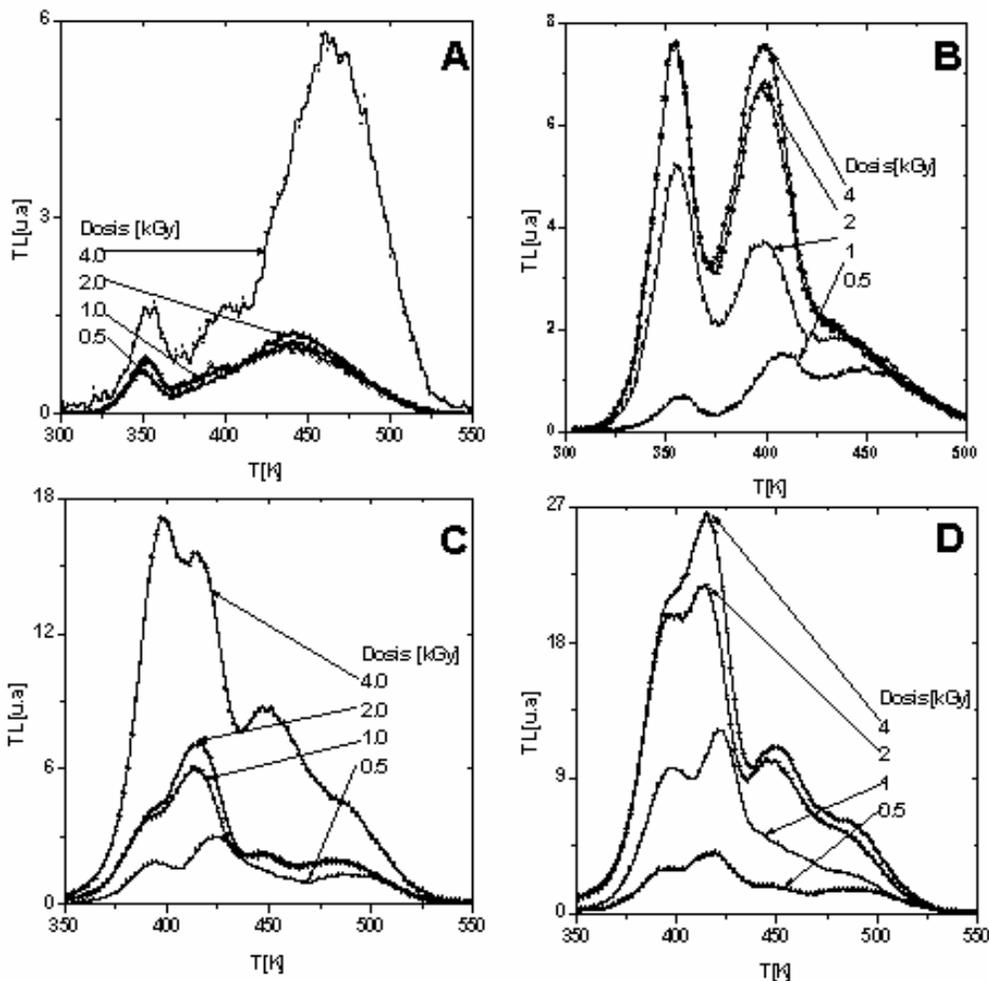


Figura 3.14 Crecimiento de las curvas de brillo como función de la dosis, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 76.70 Gy/min a una temperatura de irradiación de 200 K, donde; A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$ C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$, D) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$

La figura 3.14 exhibe las curvas de brillo de las preparaciones A, B, C y D.

La curva de brillo de la preparación A exhibe dos picos no-simétricos localizados en 320 y 450 K, el segundo pico es el de mayor intensidad TL, la curva de brillo de la preparación B presenta dos picos, casi simétricos localizados en 340 y 400 K, manteniendo casi la misma estructura desde 0.5-4 kGy.

La curva de brillo de la preparación C exhibe dos picos ubicados en 400 y 450 K, el primer pico tiene un hombro en la parte descendente, lo que indica dos trampas muy cercanas, el segundo pico tiene un hombro en la parte descendente, la curva de brillo de la preparación D exhibe dos picos localizados en 410 y 450 K, el primer pico tiene un hombro en la parte ascendente y el segundo en la parte descendente.

3.8.2.1 Respuesta TL como función de la dosis absorbida.

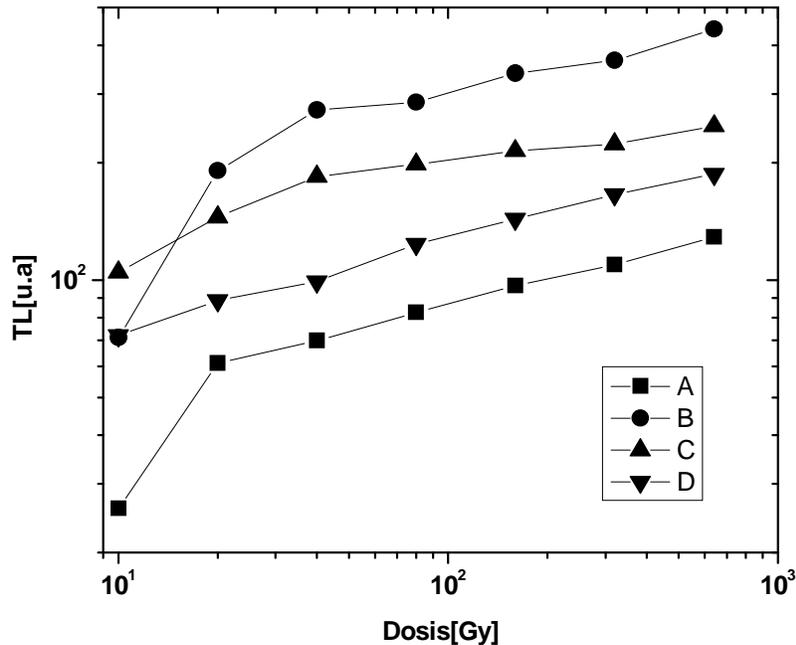


Figura 3.15 Intensidad TL como función de la dosis donde;
A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)
La figura 3.15 exhibe la relación entre la respuesta TL y la dosis.

Un aumento de la señal TL como función de la dosis, es exhibido por las 4 preparaciones entre 10 y 640 Gy, con un comportamiento sublineal desde las dosis más bajas utilizadas.

3.8.2.2 Análisis de linealidad y no-linealidad

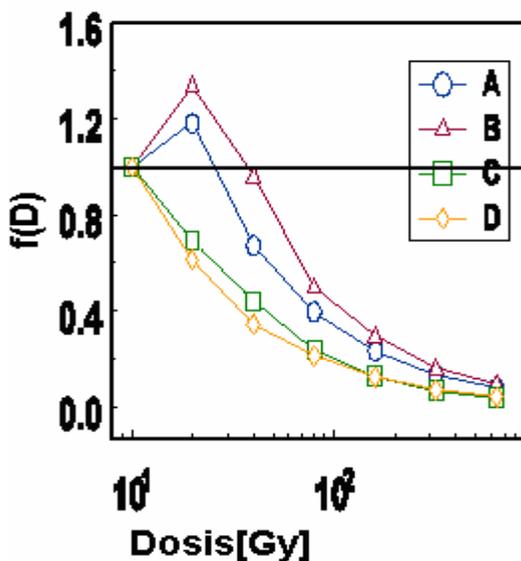


Figura 3.16 Índice de supralinealidad $f(D)$ donde;
A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La figura 3.16 presenta el comportamiento de la función dosis-respuesta.

Un comportamiento sublineal es exhibido por las preparaciones C y D entre 10 y 640 Gy, además que ambas están impurificadas con Cd y Mn, mientras que para la preparación A la zona sublineal se inicia alrededor de 30 y hasta 640 Gy, análogamente para la preparación B pero en este caso es entre 40 y 640 Gy.

3.8.2.3 Deconvolución

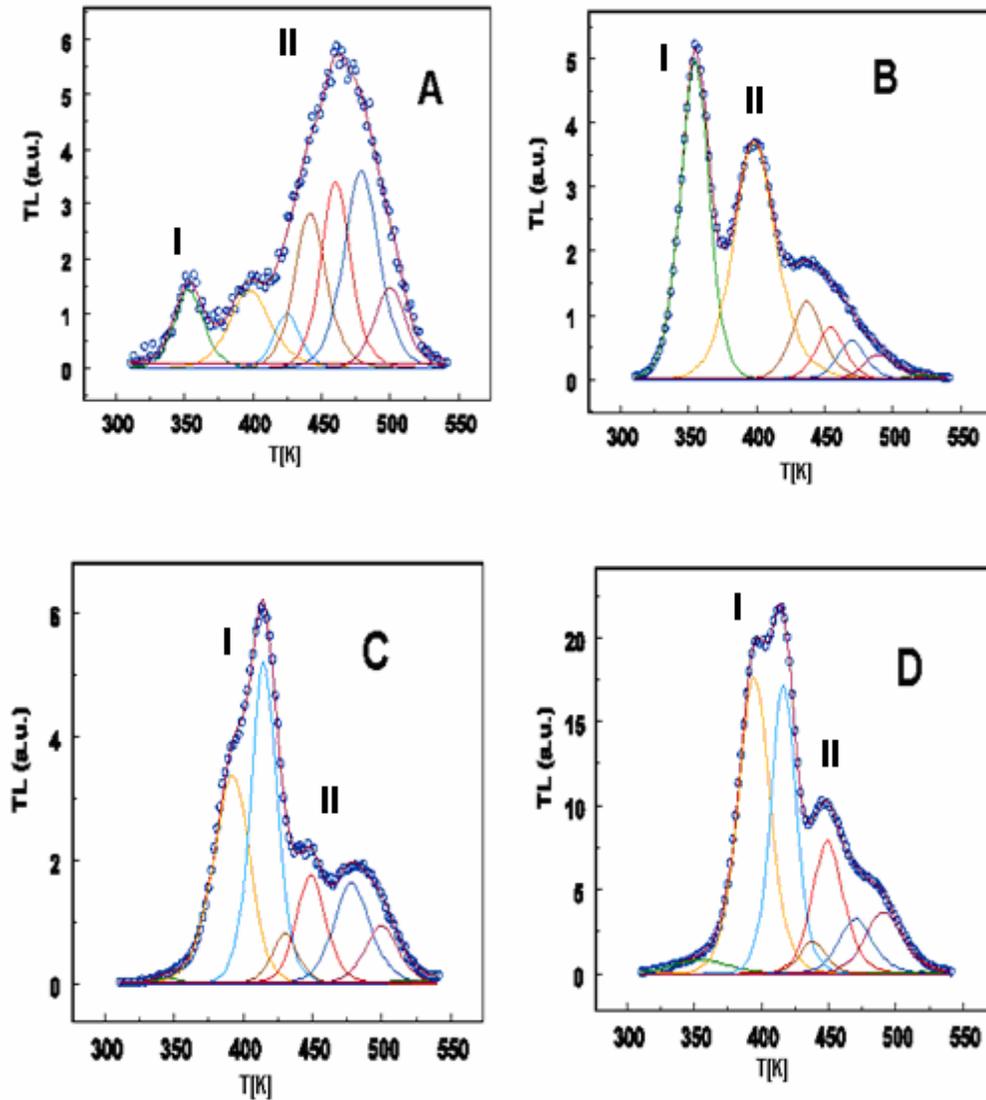


Figura 3.17 Curvas de brillo experimentales y su deconvolución, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una dosis de 2 kGy y a una temperatura de irradiación de 200 K, donde;
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$
C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$, D) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$

En la deconvolución de las curvas de brillo en picos de brillo de las preparaciones A, B, C y D, de la figura 3.17 se utilizaron 9 picos de brillo asociados con 9 trampas, el pico principal (I) de la curva de brillo de la preparación A tiene asociados 5 estados de atrapamiento, el de la preparación B sólo uno, el de la preparación C y D dos, y muestra dos estados de atrapamiento muy cercanos.

A						B						
Integral	I _M [u.a]	T _M [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]	Integral	I _M [u.a]	T _M [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]	
1	1.99E+01	2.44E+02	353.23	1.50	2.677E+20	1	6.81E+01	9.56E+02	355.03	1.38	1.69	1.03E+19
2	2.82E+01	2.40E+02	397.44	1.30	2.555E+15	2	7.64E+01	7.06E+02	398.12	1.25	1.99	1.16E+15
3	1.25E+01	1.66E+02	425.00	2.30	1.9541E+26	3	3.86E-01	5.68E+00	424.81	2.24	1.90	1.32E+26
4	4.37E+01	4.78E+02	441.69	2.10	2.21E+23	4	1.83E+01	2.31E+02	437.08	2.10	2.0	4.27E+23
5	4.81E+01	5.75E+02	460.22	2.50	2.634E+26	5	1.09E+01	1.56E+02	454.40	2.50	1.9	1.46E+27
6	6.07E+01	6.12E+02	479.07	2.20	1.93.00E+22	6	8.14E+00	1.17E+02	470.00	2.70	1.9	2.48E+28
7	2.19E+01	2.49E+02	500.00	2.70	1.94.01E+26	7	5.69E+00	7.33E+01	490.15	2.70	2.0	1.46E+27
8	8.44E-02	1.00E+00	520.00	2.90	1.93.10E+27	8	8.72E-01	1.17E+01	520.00	2.90	1.9	3.10E+27
9	3.67E-03	1.00E+00	570.00	2.90	1.58.93E+24	9	3.48E-03	1.02E+00	569.78	2.87	1.5	5.92E+24
C						D						
Integral	I _M [u.a]	T _M [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]	Integral	I _M [u.a]	T _M [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]	
1	1.02E+00	1.31E+01	346.14	1.68	2.1.01E+24	1	2.15E+01	3.72E+01	354.11	0.70	1.83	1.11E+09
2	5.79E+01	5.55E+02	392.23	1.25	1.52.18E+15	2	2.74E+02	8.10E+02	394.54	1.57	1.84	3.17E+19
3	6.47E+01	8.57E+02	414.94	2.24	1.95.01E+26	3	2.11E+02	7.92E+02	416.45	2.30	1.90	2.05E+27
4	9.92E+00	1.34E+02	430.17	2.45	1.91.74E+28	4	2.43E+01	8.86E+01	438.07	2.48	1.91	1.08E+28
5	2.46E+01	2.88E+02	448.98	2.35	1.96.63E+25	5	1.20E+02	3.62E+02	449.28	2.20	2.00	1.20E+24
6	2.81E+01	2.68E+02	478.30	2.20	2.3.27E+22	6	5.42E+01	1.49E+02	470.00	2.20	2.00	8.92E+22
7	1.44E+01	1.51E+02	500.00	2.55	1.91.28E+25	7	6.58E+01	1.67E+02	490.87	2.20	2.00	7.91E+21
8	8.88E-01	1.02E+01	520.00	2.88	1.92.42E+27	8	1.68E+00	5.38E+00	520.00	2.89	1.90	3.03E+27
9	2.64E-01	6.99E+01	570.00	2.89	1.58.75E+24	9	1.54E-02	1.14E+00	570.00	2.90	1.50	8.93E+24

Tabla 3.10 Parámetros cinéticos de las preparaciones;

A: NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B: NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

C: NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014)D: NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126) a una temperatura de 200 K.

Los parámetros cinéticos de la tabla 3.10 indican que a una temperatura de irradiación de 200 K, las preparaciones en análisis exhiben una cinética de segundo orden y general.

Las energías de activación obtenidas por deconvolución, que se presentan en la tabla 3.10 están entre 1.38 y 2.90 eV, para las preparaciones A, B y C excepto para la preparación D, donde las energías de activación están entre 0.70 y 2.9 eV.

Temperatura de irradiación de 77 K,

3.8.3 Curvas de brillo como función de la dosis.

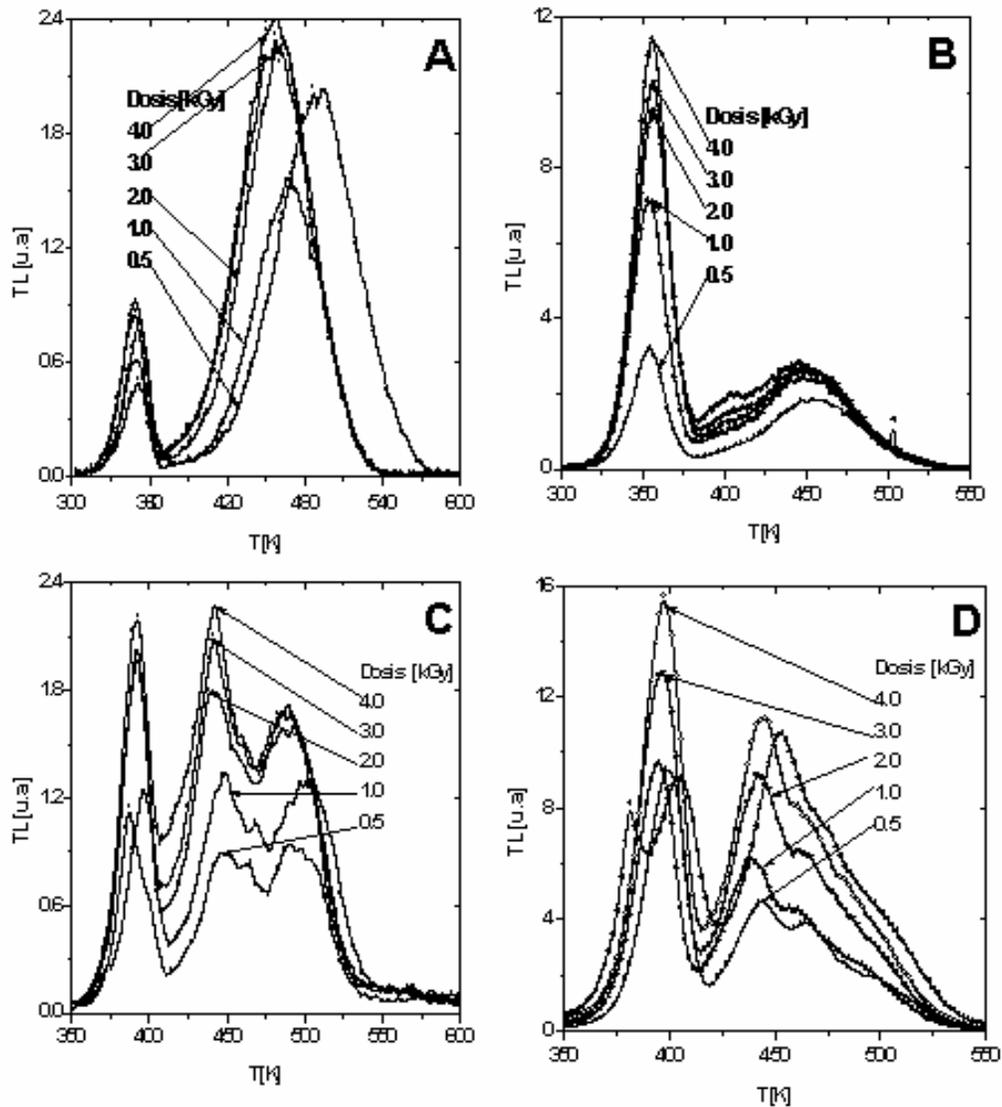


Figura 3.18 Curvas de brillo como función de la dosis, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una tasa de dosis de 76.70 Gy/min y a una temperatura de irradiación de 77 K, donde; A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366) C)NaCl:CaCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CaCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La figura 3.18 exhibe el efecto de la dosis absorbida en las curvas de brillo de las preparaciones A, B, C y D obtenidas para una temperatura de irradiación de 77 K.

La curva de brillo de la muestra A presenta dos picos casi simétricos localizados en 340 y 470 K, el pico principal esta localizado en 470 K, con un desplazamiento del pico principal hacia altas temperaturas, a partir de una dosis de 2 y hasta 4 kGy. La curva de brillo de la muestra B exhibe dos picos, el principal es casi simétrico y esta ubicado en 350 K, y un segundo pico no-simétrico. La curva de brillo de la muestra C exhibe tres picos, los dos primeros casi simétricos, tercer pico no-simétrico y pico principal localizado en 430 K. La curva de brillo de la muestra D presenta dos picos, un hombro en la parte descendente del segundo pico, y el pico principal es casi simétrico muy cercano a 390 K.

3.8.3.1 Respuesta TL como función de la dosis absorbida

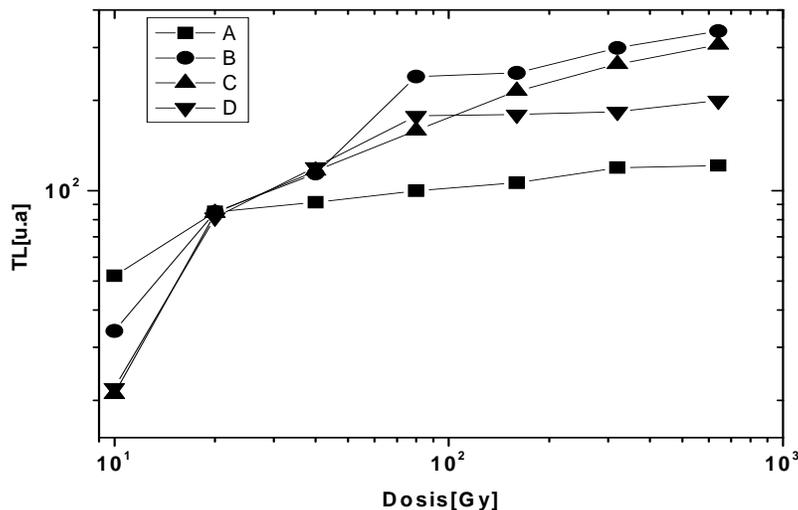


Figura 3.19 Respuesta TL como función de la dosis absorbida, donde:

A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La figura 3.19 presenta la respuesta TL como función de la dosis, en el intervalo entre 10 y 640 Gy, de las preparaciones A, B, C y D.

La respuesta TL como función de la dosis absorbida a la temperatura de irradiación de 77 K se aproxima a la zona de saturación desde 10 Gy, de lo que se infiere que conforme disminuye la temperatura de irradiación hay mayor competencia de las trampas que contribuyen al proceso TL.

3.8.3.2 Análisis de linealidad y no-linealidad

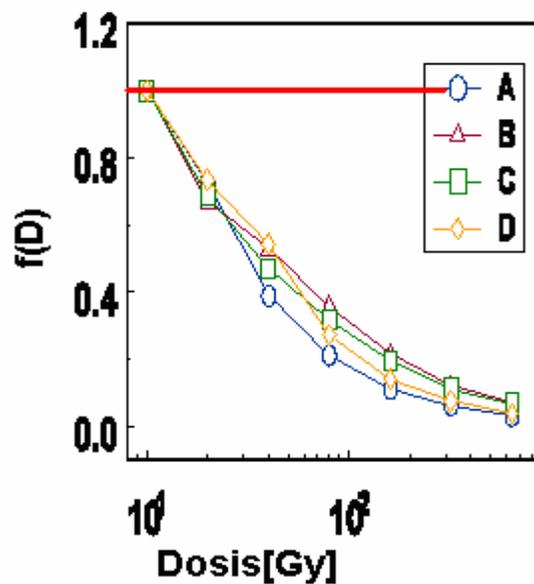


Figura 3.20 Índice de supralinealidad $f(D)$ donde;
A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La figura 3.20 exhibe la función dosis respuesta de las cuatro preparaciones, en el intervalo de dosis 10-640 Gy, con un valor menor que uno para las cuatro preparaciones lo que indica un comportamiento sublineal.

3.8.3.3 Deconvolución

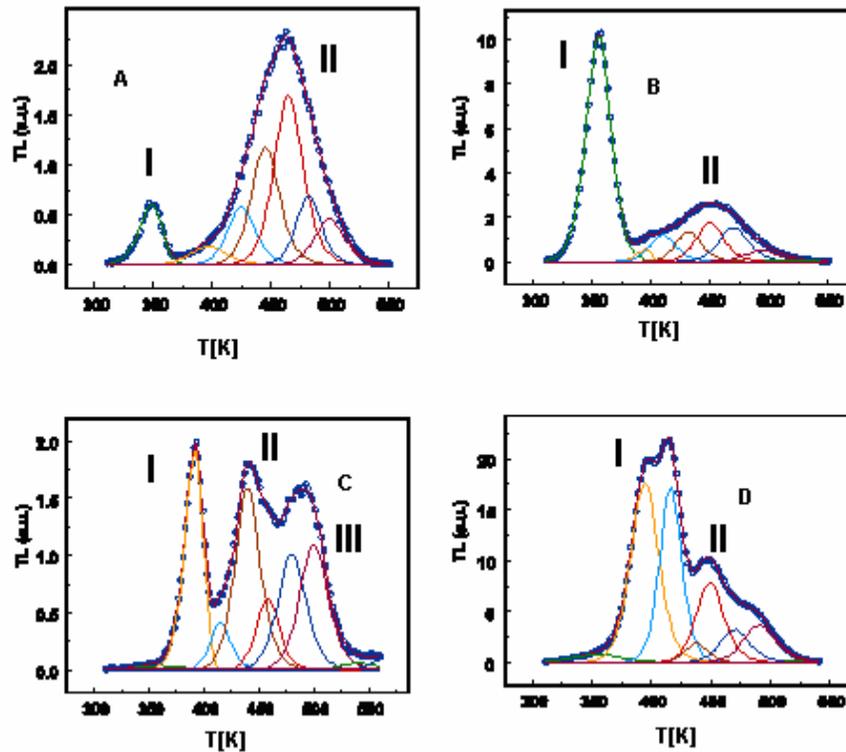


Figura 3.21 Curvas de brillo experimental y su deconvolución, expuestas a rayos γ de ^{60}Co a una dosis de 2 kGy y a una temperatura de irradiación de 77 K, donde;
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$
C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$, D) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$.

La figura 3.21 presenta la deconvolución de las curvas de brillo en picos de brillo, donde se observan 9 estados de atrapamiento asociados con las trampas generadoras de los picos de brillo, el pico principal (I) de la preparación A tiene asociadas seis trampas, el de la preparación B y C una, mientras que el pico principal de la preparación D presenta un pico satélite revelando dos estados de atrapamiento muy cercanos.

A	Integral	I _m [u.a]	T _m [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]	B	Integral	I _m [u.a]	T _m [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]
1	7.54E+00	2.57E+02	348.91	1.26	1.33	4.61E+17	1	1.41E+02	9.87E+02	355.67	1.36	1.69	6.11E+18
2	3.69E+00	7.97E+01	396.53	1.30	2.00	6.08E+15	2	4.44E+00	5.53E+01	395.23	2.33	1.05	2.19E+29
3	9.03E+00	2.45E+02	425.00	1.90	2.00	8.00E+21	3	1.75E+01	1.15E+02	410.00	1.90	2.00	5.74E+22
4	1.86E+01	5.08E+02	445.00	2.10	2.00	1.44E+23	4	1.92E+01	1.29E+02	432.05	2.16	2.00	4.81E+24
5	2.77E+01	7.26E+02	464.74	2.20	2.00	1.65E+23	5	2.71E+01	1.72E+02	450.00	2.20	2.00	1.06E+24
6	9.67E+00	2.97E+02	482.22	2.70	1.90	4.35E+27	6	2.56E+01	1.49E+02	470.00	2.20	1.99	8.70E+22
7	7.70E+00	1.97E+02	500.00	2.40	1.90	3.78E+23	7	9.32E+00	4.93E+01	493.82	2.20	1.99	5.73E+21
8	3.48E-02	1.00E+00	520.02	2.90	1.90	3.09E+27	8	1.24E+00	8.08E+00	520.00	2.90	1.90	3.10E+27
9	4.35E-03	1.00E+00	570.00	2.90	1.50	8.93E+24	9	2.19E-02	1.14E+00	570.00	2.90	1.50	8.93E+24
C	Integral	I _m [u.a]	T _m [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]	D	Integral	I _m [u.a]	T _m [K]	E [eV]	b	s[s ⁻¹]
1	1.12E+00	1.85E+01	359.72	0.70	2.00	7.41E+08	1	6.05E+00	2.44E+01	340.01	0.70	2.00	3.08E+09
2	2.08E+01	9.68E+02	391.85	1.84	1.30	1.40E+23	2	1.43E+02	9.47E+02	395.00	1.61	1.15	9.65E+19
3	5.13E+00	2.07E+02	415.00	2.30	1.99	2.57E+27	3	2.88E+01	1.52E+02	410.00	1.90	2.00	5.74E+22
4	2.43E+01	8.00E+02	439.67	2.10	1.99	2.88E+23	4	1.28E+02	6.47E+02	440.53	2.10	2.00	2.57E+23
5	8.54E+00	3.15E+02	458.49	2.49	1.90	6.79E+26	5	7.08E+01	3.34E+02	466.06	2.20	1.99	1.40E+23
6	1.72E+01	5.11E+02	480.24	2.20	1.90	2.62E+22	6	2.64E+01	1.37E+02	483.79	2.60	1.99	3.89E+26
7	1.87E+01	5.54E+02	500.00	2.44	1.99	9.03E+23	7	2.63E+01	1.36E+02	500.00	2.69	1.90	3.73E+26
8	1.11E+00	2.96E+01	539.99	2.20	1.95	5.88E+19	8	5.61E+00	2.92E+01	520.00	2.89	1.90	2.83E+27
9	6.40E-01	5.70E+01	570.00	2.60	1.50	2.10E+22	9	5.86E-01	2.44E+01	570.00	2.89	1.50	8.75E+24

Tabla 3.11 Parámetros cinéticos de las preparaciones;

A: NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B: NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)

C: NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014)D: NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126) a una temperatura de 77 K.

La tabla 3.11 presenta los parámetros cinéticos de las curvas de brillo y muestra un orden de cinética muy cercano a 2. Tainmura y Okada [55] presentan trabajos, en los que mencionan que a esta temperatura de irradiación las curvas de brillo del NaCl exhiben una cinética de segundo orden. La energía de los anchos de trampa aumentó 18% con respecto a la obtenida a 300 K, de lo que se infiere que conforme disminuye la temperatura de irradiación los estados de atrapamiento son más profundos (más cercanos a la banda de conducción).

3.8.3.4 Breve discusión de los posibles mecanismos responsables de la formación de las curvas de brillo a bajas temperaturas de irradiación.

Un posible mecanismo responsable de la respuesta termoluminiscente a bajas temperaturas, i.e. 77 y 170 K, podría consistir en el desatrapamiento de electrones o huecos de diferentes trampas y su posterior recombinación con Ca^{2+} , Cd^{2+} o Ca^{3+} o agregados de Ca^{2+} o Cd^{2+} en un estado excitado. El ion excitado podría relajarse exhibiendo la emisión característica del Ca^{2+} Cd^{2+} o como consecuencia de la recombinación de electrones atrapados i.e. en la forma de Ca^+ , Cd^+ o Mn con huecos V_K . Otro posible mecanismo generador de los picos de brillo consiste en la iniciación del efecto túnel para el par electrón- V_K asociado con diferentes defectos, este efecto es dependiente de la temperatura, además este tipo de mecanismo ha sido propuesto para explicar el efecto de un campo eléctrico sobre los procesos de recombinación en halogenuros alcalinos dopados con impurezas divalentes, y coincide con una cinética de primer orden [26].

La irradiación a baja temperatura provee una única oportunidad para probar la validez de los modelos anteriores porque a bajas temperaturas de irradiación los intersticiales están casi inmóviles, así las trampas causadas por impureza/intersticial y los procesos de migración y/o agregación deberían estar ausentes [56].

3.9 Análisis de la respuesta TL como función de la temperatura de irradiación (T_{irr})

En esta sección se analizará la respuesta TL como función de la temperatura de irradiación con el objetivo de dilucidar cuales son los posibles mecanismos responsables de las variaciones en la intensidad TL. La temperatura de irradiación produce cambios en la estructura de las curvas de brillo. Los resultados de la deconvolución de las curvas de brillo en picos de brillo a temperatura ambiente presentan una cinética de primer orden, mientras que para 77, 200 y 263 K una de segundo orden y general en algunos de los picos, de lo que se infiere que el cambio de la temperatura de irradiación modifica la rapidez de los procesos de recombinación y/o reatrapamiento y la competencia entre trampas, además esto puede asociarse con las diferentes concentraciones de iones impurificadores presentes en las preparaciones analizadas.

3.9.1 Curvas intensidad TL como función de la temperatura de irradiación

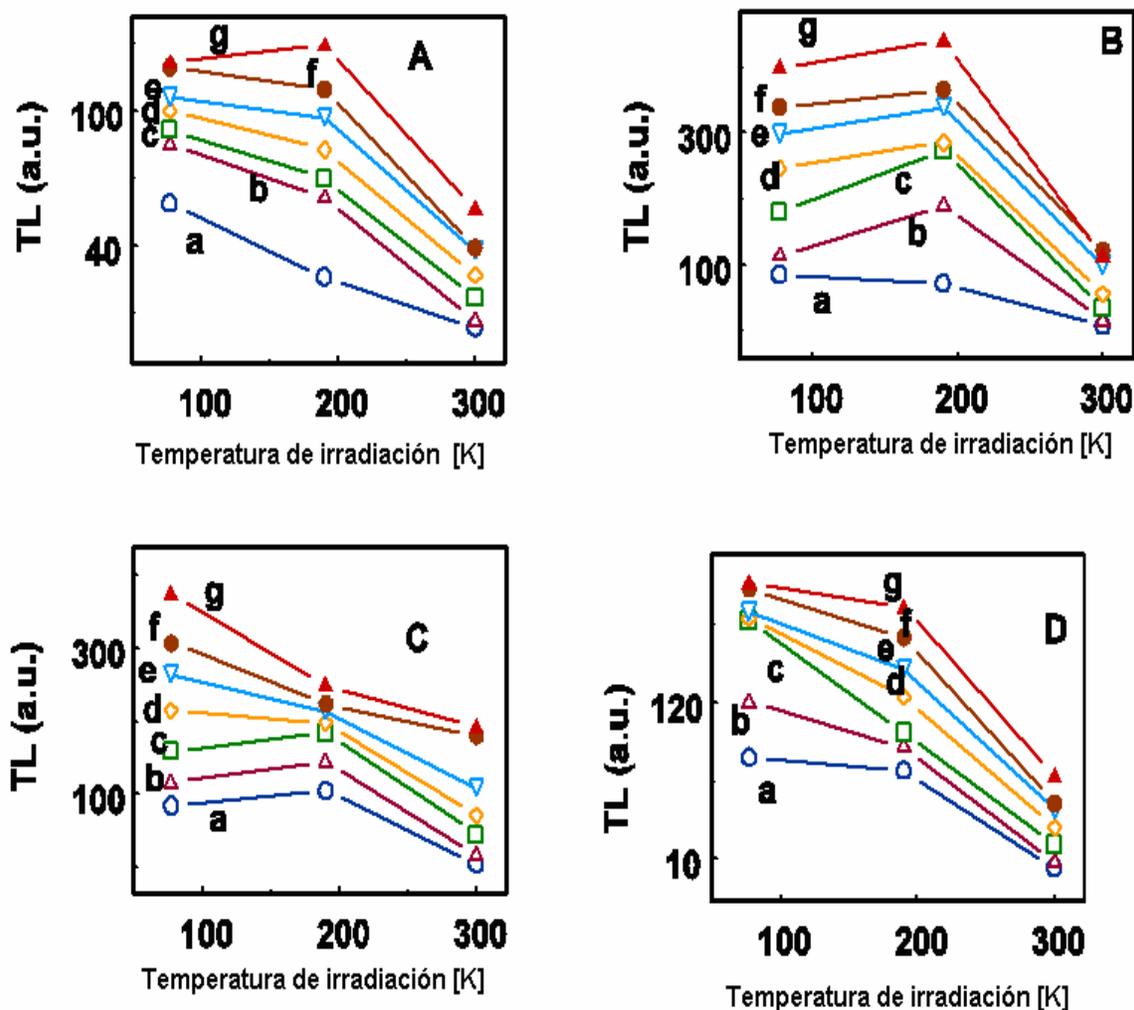


Figura 3.22 Respuesta TL como función de la temperatura de irradiación (T_{irr}) donde; a) 10, b)20, c)40,d)80, e)160, f)320, g)640 Gy expuestas a rayos γ de ^{60}Co .
A) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.1444):\text{MnCl}_2(0.115)$, B) $\text{NaCl}:\text{CaCl}_2(0.0098):\text{MnCl}_2(0.1366)$
C) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.00263):\text{MnCl}_2(0.0014)$, D) $\text{NaCl}:\text{CdCl}_2(0.0199):\text{MnCl}_2(0.0126)$.

La figura 3.22 muestra la respuesta TL como función de la temperatura de irradiación entre 77 y 300 K y de la dosis en el intervalo de 10 y hasta 640 Gy, se utilizaron las letras a-g, para indicar el aumento de la dosis.

La preparación A muestra un decrecimiento de la señal TL en función de la temperatura de irradiación (T_{irr}) entre 77 y hasta 300 K y de 10 a 320 Gy, un

probable mecanismo el cual explique este comportamiento es que trampas térmicamente inestables no se llenen por completo pero se alcanza un estado de equilibrio entre el llenado y la completa desocupación, excepto a la dosis de 640 Gy, que entre 77 y 200 K la respuesta TL aumenta y después disminuye hasta 300 K, un posible escenario es que a esta dosis hay mayor cantidad de electrones en trampas térmicamente estables a una T_{irr} de 200 K y conforme aumenta la T_{irr} disminuye el reatrapamiento y a su vez la intensidad TL [57].

Para la preparación B a una dosis de 10 Gy, la respuesta TL decrece como función de la temperatura, entre 77 y 300 K, pero para las dosis de 20-640 Gy, aumenta entre 77 y 200 K y disminuye a 300 K, este comportamiento puede ser atribuido a que los electrones que estén atrapados en trampas térmicamente inestables tienen dos probables acciones; recombinarse con huecos en centros luminiscentes o ser reatrapados en trampas térmicamente estables [56], este mismo comportamiento se presenta en la preparación C para la que la señal TL aumenta en el intervalo de dosis de 10-40 Gy entre 77 y 200 K, y posteriormente disminuye a partir de una dosis de 80 a 640 Gy, en el intervalo de temperatura de 77 a 300 K por lo cual se puede suponer el mismo argumento dado para la preparación B.

La señal TL para la preparación D es decreciente como función de la temperatura (77-300 K) en el intervalo de dosis de 10 a 640 Gy, un probable mecanismo el cual explique este comportamiento, es que trampas térmicamente inestables no se llenen por completo pero se alcance un estado de equilibrio entre el llenado y la desocupación [57].

3.10 Banda de absorción F, curvas de coloración y modelo de Boer.

Uno de los principales defectos por su contribución al proceso termoluminiscente, es el F por sus propiedades ópticas (banda de absorción F), mediante la cual se puede conocer el coeficiente de absorción α y el ancho de la banda prohibida de los materiales analizados [58].

A partir de esto se realizaron los siguientes análisis:

1. Bandas de absorción F como función de la dosis,
2. Energía del centro F calculado con el modelo de Boer,
3. Curvas de coloración como función de la de dosis.

3.10.1 Bandas de absorción F como función de la tasa de dosis.

Las bandas de absorción F son producidas cuando un ion o iones impureza realizan transiciones del estado base a un estado excitado por la absorción de luz de longitud de onda de 300 a 600 nm, además de que estas bandas son características del material y el área bajo éstas es proporcional a la concentración de centros F [58].

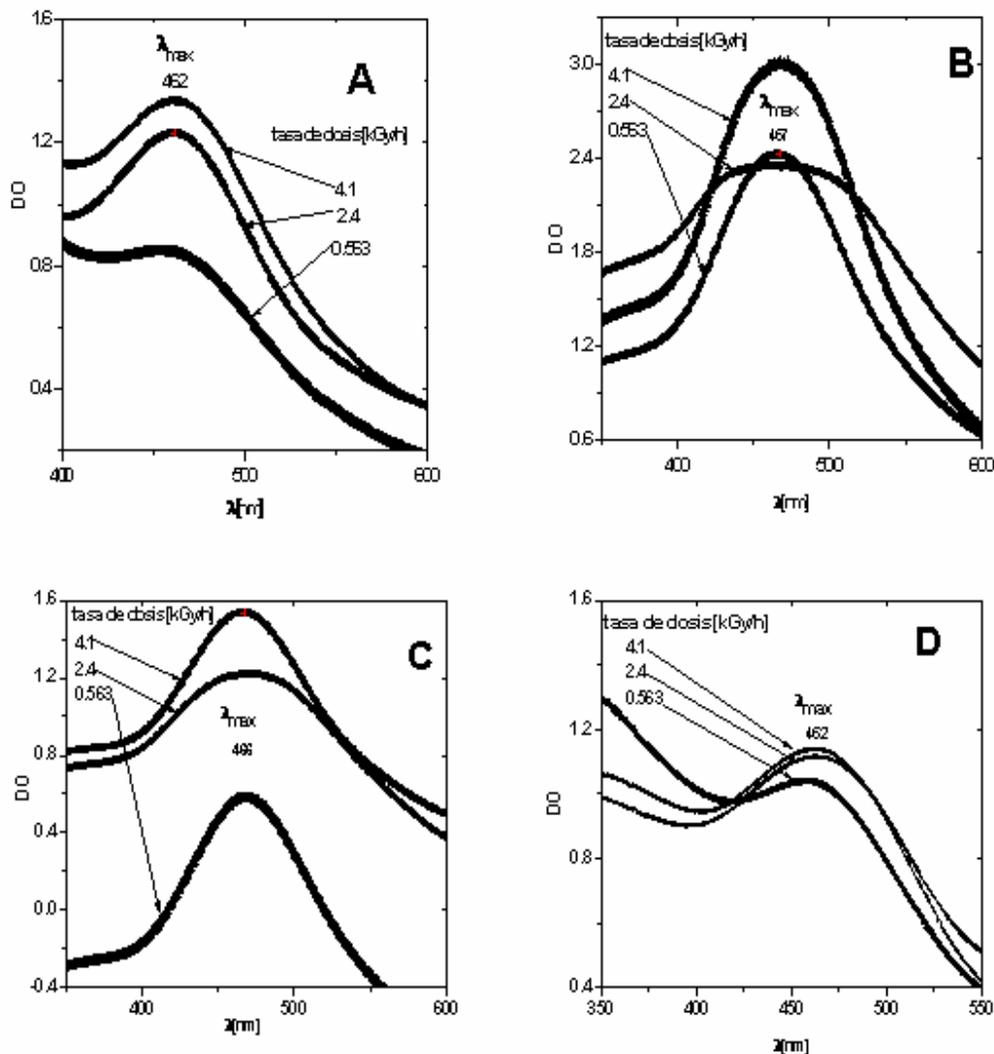


Figura 3.23 Banda de absorción F como función de la tasa de dosis donde;
A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

La figura 3.23 presenta el comportamiento de la banda de absorción F a las siguientes tasas de dosis; 4.10, 2.40 y 0.56 kGy/h, el máximo de la banda de absorción se encuentra en 459.00, 467.00, 466.00 y 462.00 nm para las preparaciones A, B, C y D, respectivamente lo que indica que la posición del máximo de esta banda depende de la concentración de los iones impureza, las energías asociadas a la banda F tienen un valor de 2.67, 2.63, 2.63 y 2.66 eV, para las muestras A, B, C y D respectivamente.

3.10.2 Modelo de Boer

Uno de los objetivos de este trabajo es calcular los probables estados energéticos del centro F en el cristal de NaCl con el modelo de Boer a partir de la ecuación de Schrödinger utilizando un modelo de pozo de potencial, para comparar con el valor experimental obtenido de la banda de absorción F. En el apéndice C de este trabajo se encuentra el desarrollo de la solución de la ecuación de Schrödinger aplicada a este modelo.

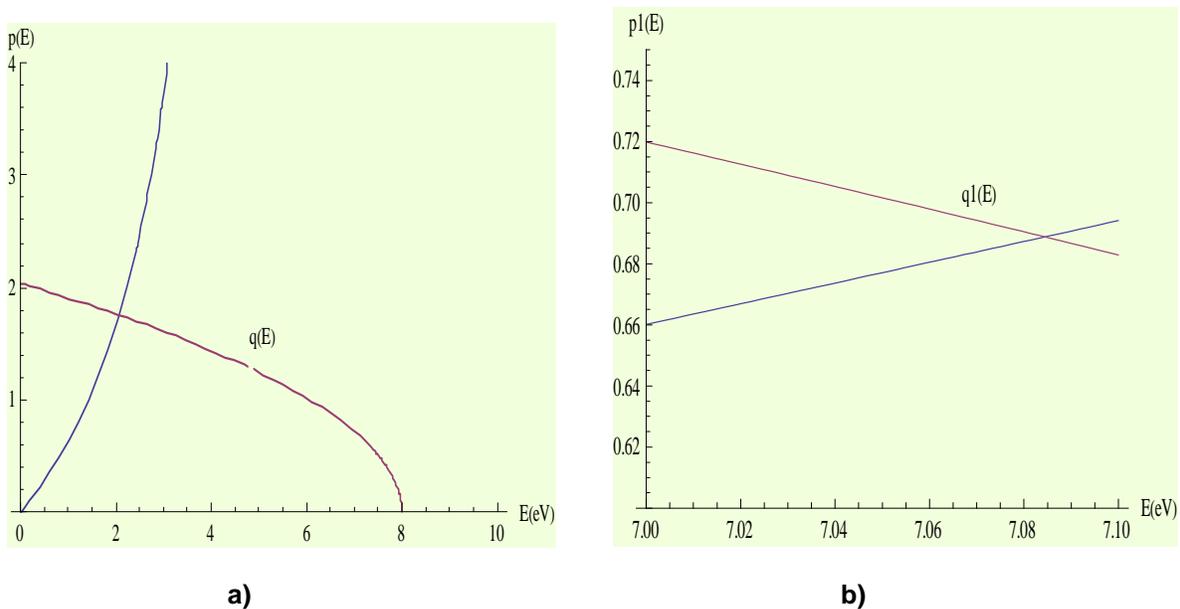


Figura 3.24 a) Gráfica de la función de primera clase, b) Gráfica de la función de segunda clase

La figura 3.24 presenta las gráficas de las soluciones de la ecuación de Schrödinger a partir del modelo de Boer, la energía calculada de acuerdo a la ecuación 1.54, para el centro F en la matriz de NaCl tiene el siguiente valor: $E_1=2.07$ eV mientras que el valor obtenido a partir de las bandas de absorción F experimentales de la figura 3.23 es de 2.64 eV y difieren en un 20%.

La diferencia entre ambos valores puede deberse a que la estructura de un centro F no corresponde a un electrón confinado en un pozo de potencial, esta sólo es una aproximación. Además la estructura de este defecto no es estática sino dinámica, en este contexto los iones vecinos (Na^+ y Cl^- en el NaCl) están participando en la vibración de la red. Esto podría producir un desplazamiento de los iones vecinos de sus posiciones de equilibrio y esto alteraría el tamaño del pozo de potencial donde el electrón está atrapado [58]. La intersección de las funciones de segunda clase p_1 y q_1 de la ecuación 1.55 proporcionan otro probable valor de la energía del centro F de $E_2 = 7.08$ eV, que corresponde a una longitud de onda de 177 nm, y que puede ser asociado con la banda producida por el par (electrón-hueco) [15] [58].

3.10.3 Curvas de coloración

En la figura 3.25 se presentan las curvas de coloración medidas de las 4 preparaciones en análisis a tres diferentes tasas de dosis, con el objetivo de observar su efecto en la concentración de centros F.

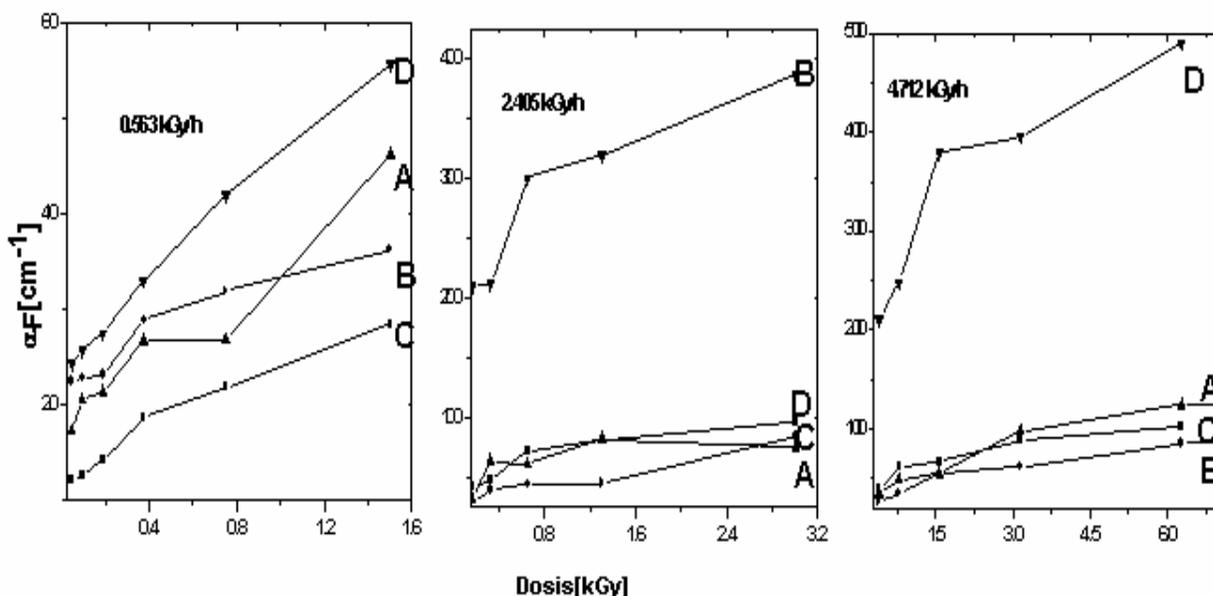


Figura 3.25 Curvas de crecimiento de los centros F donde;
 A) NaCl:CaCl₂(0.1444):MnCl₂(0.115), B)NaCl CaCl₂(0.0098):MnCl₂(0.1366)
 C)NaCl:CdCl₂(0.00263):MnCl₂(0.0014), D)NaCl:CdCl₂(0.0199):MnCl₂(0.0126)

Las curvas de coloración de la figura 3.25, exhiben sólo las dos primeras etapas de coloración, para las tres tasas de dosis. En la tasa de dosis de 0.563 kGy/h la mayor concentración de defectos se obtiene para la preparación D, además de ser la preparación con mayor cantidad de iones de Cd, de lo que se puede inferir que estos iones son más eficientes en el proceso de captura de electrones, mientras que para las preparaciones A y B se mantiene casi igual.

La concentración de defectos a la tasa de dosis de 2.405 kGy/h es mayor para la matriz B, la que tiene mayor concentración de iones de Ca y la menor para la preparación A, para las preparaciones C y D, y se mantiene casi constante.

La curva de coloración de la preparación D a una tasa de dosis de 4.71 kGy/h exhibe la mayor concentración de defectos mientras que la curva de coloración de la preparación B la menor, esto puede deberse a la competencia de los dos diferentes impurificadores en las preparaciones i.e. Ca:Mn y Cd:Mn y a la eficiencia en la captura de electrones por impurezas divalentes.

Los iones de Ca aumentan la formación de defectos mientras que los iones de Mn y Cd la disminuyen [59], por tanto la competencia entre trampas y eficiencia en la captura son los mecanismos responsables de los defectos responsables de la coloración.

Tasa de dosis [kGy/h]	Primera etapa [kGy]	Segunda etapa [kGy]
0.56	0.04- 0.20	0.40 -1.60
2.40	0.04-0.20	0.40 -3.00
4.71	0.04- 1.75	0.40 -7.00

Tabla 3.12 Etapas de la curvas de coloración a distintas tasas de dosis.

A partir de los datos de la tabla 3.12 se puede inferir que la primera etapa de la curva de coloración para las tasas de dosis de 0.56 y 2.40 kGy está casi en el mismo intervalo de dosis 0.04-0.20 kGy, mientras que la segunda etapa de coloración a la tasa de 4.71 kGy/h está de 0.40 a 7.00 kGy, lo que indica que a mayor tasa de dosis se presenta un aumento de esta etapa o quizá se este acercando a la tercera etapa.

Conclusiones

En este estudio se analizaron algunas de las propiedades termoluminiscentes y se realizó una medición óptica de cuatro cristales de NaCl en dos diferentes concentraciones de $\text{CdCl}_2:\text{MnCl}_2$ y $\text{CaCl}_2:\text{MnCl}_2$ con el fin de obtener evidencia experimental del efecto de las impurezas, la temperatura de irradiación, la dosis, la tasa de dosis, etc., Los comentarios finales se harán en dos secciones los obtenidos a temperatura de irradiación (T_{irr}) de 300 K y los realizados a 77, 200 y 263 K.

Temperatura de irradiación (T_{irr}) de 300 K

El orden de la cinética obtenido con la deconvolución de las curvas de brillo en picos de brillo fue de primer orden, lo que indica que la recombinación es el mecanismo responsable de la generación de las curvas de brillo a 300 K.

En este momento no hay algún criterio que permita verificar si la deconvolución de una curva de brillo en picos de brillo sea correcta o no. El único parámetro que puede ser usado es la figura de merito que indica la precisión del ajuste,

Garo et al [53] establece que debe ser menor que 2.5%, en este trabajo el valor fue de: 1.49, 1.55, 1.19 y 1.26% para las preparaciones A, B, C y D respectivamente.

El efecto combinado de la dosis-concentración de Ca en las curvas de brillo de las preparaciones A y B, resulta en estructuras muy similares, además de que a la dosis de irradiación de 160 Gy, el pico principal muestra una doble estructura revelando dos niveles de atrapamiento muy cercanos.

El efecto de la dosis se observa en la estructura de las curvas de brillo i.e. en el ancho e intensidad TL de los picos de brillo de las matrices impurificadas con Cd que son los de mayor intensidad TL, comparados con los de las muestras dopadas con Ca, esta diferencia puede ser atribuida a que los iones de cadmio, son más eficientes en la producción de los defectos responsables de la respuesta TL ante el efecto de la dosis.

Las lecturas de las intensidades TL de las preparaciones A y C al final de 10 ciclos (irradiación, lectura y calentamiento) exhibieron variaciones del 1.6 y 3.7 %, con respecto a la lectura inicial TL, el valor del índice de variabilidad del detector es 0.11, lo que indica que una mejor reproducibilidad puede obtenerse con el uso individual de factores de sensibilidad asociados a cada dosímetro.

La medida del desvanecimiento de la señal TL en función del tiempo se llevo a cabo en un periodo de 120 días para las cuatro preparaciones con una disminución de entre 21 y 40 % de la señal.

Los valores de la energía de los anchos de trampa calculados con la deconvolución de la curva de brillo de la preparación A aumentan como función del tiempo de almacenamiento lo que indica que los picos están generados por una distribución de trampas, mientras que los valores de energía de los anchos de trampa de los picos de la preparación B se mantienen constantes lo que evidencia que estos picos son generados por sólo una trampa.

La respuesta relativa con la energía de la preparación C exhibe un aumento a partir de 100 keV, a esta energía de irradiación la mayor contribución a la respuesta relativa a la energía del sólido está dada por la energía depositada por interacciones fotoeléctricas, entre 30 y 50 keV se observa un aumento en la respuesta con la energía después un decrecimiento que puede ser debido a una atenuación en el dosímetro y el inicio del efecto fotoeléctrico en el material de referencia que para este caso es aire.

Temperaturas de irradiación (T_{irr}) de 77, 200 y 263 K

Las curvas de brillo de las preparaciones A, B, C y D a las temperaturas de irradiación 77, 170 y 263 K presentan una cinética de segundo orden, lo que indica que los procesos responsables de la generación de las curvas de brillo en estas temperaturas de irradiación son la recombinación y el reatrapamiento, ambos igualmente probables. Debido a las características físicas (higroscópicas) de la matriz de NaCl no se recomienda como candidato a dosímetro TL a una temperatura de 263 K, por su alta solubilidad, una alternativa podría ser que se recubriera con un polímero. La intensidad TL como función de la T_{irr} para la preparación A decrece como función de la temperatura entre 77 y 300 K en el intervalo de dosis entre 10 y 320 Gy, de lo que se puede inducir que conforme aumenta la T_{irr} , los procesos de recombinación y reatrapamiento son más eficientes en el intervalo entre 77 y 200 K comparados con la rapidez de recombinación a 300 K, excepto a la dosis de 640 Gy para la que la respuesta TL aumenta entre 77 y 200 K y después disminuye a 300 K.

El mismo argumento puede ser establecido para el caso de la respuesta TL dependiente de la (T_{irr}) para la preparación D. La respuesta TL como función de la temperatura de irradiación para la preparación B aumenta entre 77 y 200 K y después disminuye a 300 K, de 20 a 320 Gy, este comportamiento puede ser atribuido a que los electrones que estén atrapados en trampas térmicamente inestables tienen dos probables acciones; recombinarse con huecos en centros luminiscentes o ser reatrapados en trampas térmicamente estables. La respuesta TL en función de la temperatura para la preparación C, aumenta entre 77 y 200 K y de 10 a 40 Gy, después disminuye entre 80 y 640 Gy en el mismo intervalo de temperatura esto puede ser atribuido a la saturación de trampas a partir de 80 Gy.

Las energías de los anchos de trampa de las curvas de brillo a una T_{irr} de 77 y 200 K, son mayores que las obtenidos a una T_{irr} de 300 K en un 25%, ya que el valor máximo a esta temperatura es de 2.1 eV (preparación D) y el máximo a 77 y 200 K (preparaciones A, B, C y D) está alrededor de 2.9 eV, de lo que se infiere, que a estas temperaturas de irradiación los estados de atrapamiento son más profundos además de que hay una mayor contribución de trampas que aumenta respuesta TL. La intensidad TL como función de la dosis absorbida a una temperatura de irradiación de 77 K exhibe una respuesta sublineal en todo el intervalo de dosis entre 10 y 640 Gy, de lo que se puede inferir que la población y competencia entre trampas, además de los procesos de recombinación y reatrapamiento son más eficientes.

La banda de absorción F obtenida experimentalmente para las cuatro preparaciones presenta su máximo alrededor de 460 nm con una energía asociada de 2.6 eV, las energías del centro F calculadas con el modelo de Boer tienen un valor de 2.07 eV con una diferencia de 20%, con respecto al valor experimental. El valor obtenido de la segunda solución es de 7.08 eV, que puede ser asociada con la banda generada por el par (electrón-hueco).

De los análisis hechos con luminiscencia estimulada por calor y absorción óptica a las preparaciones de NaCl doblemente impurificadas con $\text{CaCl}_2:\text{MnCl}_2$ y $\text{CdCl}_2:\text{MnCl}_2$ se puede concluir que estos materiales presentan algunas propiedades termoluminiscentes pero se necesita realizar más experimentos para determinar cuantitativamente las propiedades de este material.

Referencias

- [1] Ortiz M, Furetta C, Kittis G., Negrón M., Cruz Z., Radiation Effects & Defects in Solids 161 (2006) 383-393.
- [2] Ortiz M, Ramos B. S., Cruz Z., Applied Radiation and Isotopes, 63 (2005) 733-736.
- [3] Yigal S. Horowitz, Thermoluminescence and Thermoluminescence Dosimetry volume I, CRC Press, Inc. Boca Raton Florida 1984.
- [4] Attix Frank H. Introduction to radiological physics and radiation dosimetry A, Wiley- Interscience publication 1986.
- [5] A.F. McKinlay, Thermoluminescence Dosimetry, Medical Physics Handbook 5 1981.
- [6] P.R. González, C. Furetta, B.E. Calvo, M.I. Gaso, E. Cruz-Zaragoza, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 260 (2007) 685-692.
- [7] Azorin, J, Gonzalez, G., Gutierrez, A., Salvi, R., Health Phys. 46(1984) 269-274.
- [8] Budd T, Marshall M, Peaple L.H J and Douglas, Phys. Med. Bio. 24(1979)71-80.
- [9] G Mondragón Galicia, D Mendoza-Anaya, M E Nicho-Diaz, R García-García and J Reyes-Gasga, J. Phys. D: Appl. Phys. 41 (2008)1-8.
- [10] E. Cruz, M. Barboza, V. Chernov, R. Meléndrez, S. Ramos, A. Negrón J. M. Hernández and H. Murrieta, Radiation Protection Dosimetry 119 (2006)102-105.
- [11] I. Gamboa-de Buen, A. E. Buenfil, C. G Ruiz, M. Rodríguez Villafuerte, A. Flores and M. E. Brandan, Phys. Med. Biol. 43(1988) 2073-2083.
- [12] S. Guru, Prasad K, Parthasarahi, W.D. Bloomer, Medical Physics on line 24 (1997) 883-885.
- [13] A.J.J. Bos, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 184 (2001) 3-28.
- [14] C. Furetta, Handbook of Thermoluminescence, World Scientific 2003.
- [15] Kittel C., Introducción a la Física del estado sólido, segunda edición, Editorial Reverte 1965.
- [16] H. Pick, Annalen der Physik 35 (1939) 73-83.

-
- [17] Álvarez García S, Tesis de doctorado, F- center effects in the luminescent properties of $KCl_{1-x}Br_x$ with divalent lead impurity, UNISON (2005)
- [18]Eisberg R., Resnick R., Física Cuántica, Edt. Limusa, 1978.
- [19]James E Turner., Atoms, Radiation, and Radiation Protection, Pergamon Press 1985.
- [20]Robley D. Evans, Ph. D. The atomic nucleus, McGraw-Hill Book Company 1955.
- [21] Baldassare Di Bartolo Optical Interactions in solids Jonh Wiley & Sons, Inc 1968.
- [22]C. Furetta, Thermoluminescence "La Rivista del Nuovo Cimento, della Societa Italiana di Fisica", 1998.
- [23]Ortiz M., Tesis de Maestría: Estudio de las propiedades ópticas y termoluminiscentes del sólido cristalino $NaCl:Ca_2:Mn_2$ para su uso como dosímetro, ICN.- UNAM 2004.
- [24]R. Chen, G. Fogel, Radiation Protection Dosimetry 47 (1993) 23-26.
- [25]C.E. May and J.A.Partridge, Journal of Chemical Physics 40 (1964)1401-1409.
- [26] FJ López, P Colino, M M Pérez and F Jaque, J. Phys.Condens, Matter 3 (1991) 8127-8133.
- [27]S.W.S Mc Keever, Thermoluminescence of Solids, Cambridge Solid States Science Series, 1985.
- [28]V.Pagonis,G, Kitis, C. Furetta, Numerical and practical excercises in thermoluminescence, Springer 2006.
- [29]S.W.S McKeever , R Chen, Radiation Measurements, 27 (1997) 625-661.
- [30]Kitis G., Furetta C., Radiation Effects & Defects in Solids, 160 (2005)285-296.
- [31]L.Larson,R. Katz, Nuclear Instruments and Methods, 138 (1976) 631-636.
- [32]M.P.R.Waligorsky, R.Katz, Nuclear Instruments and Methods, 172 (1980) 463-470.
- [33]M.P.R.Waligorsky, R.Katz, Nuclear Instruments and Methods, 175 (1980) 48-50.

-
- [34]M.P.R.Waligorsky, P.Olko, P.Bilski., Radiation Protection Dosimetry, 47 (1993) 53-58.
- [35]Kitis G., Journal Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 247 (2001),697-703.
- [36]Kitis G.,Gomez Ros J M,Tuyn, Journal Physics Applied Physics, 31 (1998)2636-2641.
- [37] P.R. González, C. Furetta, B.E. Calvo, M.I. Gaso, E. Cruz-Zaragoza, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 260 (2007) 685-692.
- [38]Grossweiner L.I.,J. Applied Physics ,24(1953) 1306.
- [39] Balarin M., Physics Status Solidi A, 54 (1979) K137.
- [40]Chen R., J. Appl.Phys, 40 (1969)570.
- [41]A.J.Dekker Solid State Physics, Prentice Hall 1962.
- [42] An. Kuznetsov, Journal of Luminescence 72-74(1997) 767-768
- [43] A. Smakula, Z. Physic 59 (1930) 603.
- [44]Bernal S.,Hernandez J.,Murrieta H.,Radiation Physics. Chemistry, 52 (1998) 655-658.
- [45]Cruz Zaragoza E., M. Barboza, V. Chernov, Radiation Protection Dosimetry, 119 (2006)102-105.
- [46]McKelvey J. P. Física del estado sólido y de Semiconductores Limusa (1976)
- [47] Draganic, I.G., Draganic, Z.D, The Radiation Chemistry of Water, Academic Press, New York 1971.
- [48]Hodgson, E.R., Delgado, A.and Alvarez Rivas, J.L.J.Phys. C Solid State Phys 12 (21) 4393-4398
- [49] A. T Davison, A G. Kozakiewick, T. E. Derry, J.D Commins, M.Suszynska, Nuclear Instruments and Methods, B 218 (2004) 249-254.
- [50] A. T Davison, A G. Kozakiewick, T. E. Derry, J.D Commins, M.Suszynska, L.Valberg and P.D. Townsend, Physica Status Solidi:C 3 (2007)1044-1047
- [51] Furetta C., Kitis G.,P.S Weng, T.C. Chu, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 420 (1999) 441-445
- [52] Y.S.Horowitz, Radiation Protection Dosimetry, 6 (1984) 17-20.

- [53] H. Garo Balian, Nelson W. Eddy, Nuclear Instruments and Methods, 145, Issue 2 (1997) 389-395.
- [54] S.W.S McKeever, Physics Status Solidi A62 (1980) 331
- [55] Tainmura, K. & Okada, T., Physical Review B21 (1980) 1690.
- [56] A.R Lakshmanan, Bhuwan Chandra, R C Bhatt, W Hoffman & R Spalleck, J. Phys D, Appl. Phys 18 (1985) 1673-1691
- [57] G. Kitis, E. Kaldouri & Stef Charalambous, J. Phys. D. Appl. Phys. 23 (1990) 945-949
- [58] J. García Sole, L.E. Bausá and D. Jaque, An introduction to the optical spectroscopy of inorganic solids, John Wiley & Sons, Ltd 2005
- [59] V.K. Jain, Physica Status Solidi, B44 (1971) 11

Apéndice A

En este apéndice se definen algunos conceptos y unidades radiológicas usados en este trabajo [4].

1.-Fluencia

Sea N_e el valor del número de partículas que atraviesa una esfera durante un intervalo de tiempo de t_0 a t . Si la esfera tiene una sección transversal da se puede definir la fluencia Φ como el cociente del diferencial de N_e por da , dado por:

$$\Phi = \frac{dN_e}{da} [m^{-2}] \quad (A.1)$$

2.-Tasa de fluencia

La fluencia está definida para todos los valores de t en el intervalo de $t=t_0$ (para el cual $\Phi = 0$) y a $t=t_{\max}$ para el cual $\Phi = \Phi_{\max}$. Entonces en algún tiempo t dentro del intervalo donde está definida la tasa de fluencia en P se tiene que;

$$\varphi = \frac{d\Phi}{dt} = \frac{d}{dt} \left[\frac{dN_e}{da} \right] [m^{-2}s^{-1}] \quad (A.2)$$

3.-Fluencia de energía

La fluencia de energía Ψ es el cociente entre dR y da , donde dR es la suma de las energías de todas las partículas que entran en una esfera de área efectiva da .

$$\Psi = \frac{dR}{da} [J/m^2] \quad (A.3)$$

Para haces monoenergéticos de energía E , la relación anterior se escribe:

$$\Psi = E\Phi [eV / m^2] \quad (\text{A.4})$$

4.-Kerma

El kerma (K) es la suma de las energías cinéticas iniciales de todas las partículas cargadas, liberadas por partículas ionizantes sin carga, en una masa dm

$$K = \frac{dE_{tr}}{dm} [Gy] \quad (\text{A.5})$$

Si se tiene una fluencia de energía $\Psi [J / m^2]$ de fotones monoenergéticos, con coeficiente másico de absorción de energía $\left(\frac{\mu_{en}}{\rho} \right)$, se puede expresar el kerma

de la siguiente manera:

$$K = \Psi \left(\frac{\mu_{tr}}{\rho} \right)_{E,Z} \quad (\text{A.6})$$

El valor esperado de la energía cinética neta transferida a partículas cargadas por unidad de masa en un punto de interés, excluyendo la energía emitida por pérdidas radiativas y la energía que pasa de una partícula a otra, se denomina kerma por colisiones (K_c).

5.-Dosis

La dosis D es el valor esperado de la energía absorbida en la materia por unidad de masa en un punto de interés.

$$D = \frac{dE_{impartida}}{dm} [Gy] \quad (\text{A.7})$$

6.-Tasa de dosis

La tasa de dosis \dot{D} es la dosis absorbida por unidad de tiempo.

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} = \frac{d}{dt} \left(\frac{dE_{\text{impartida}}}{dm} \right) \text{ [Gy/s]} \quad (\text{A.8})$$

7.-Equilibrio de partícula cargada

El equilibrio de partícula cargada (EPC) se presenta cuando el número de partículas cargadas que salen de un volumen V es reemplazado por un número igual de partículas del mismo tipo y energía que entran en él, independientemente de que su origen sea el mismo, alrededor de un punto P . Si esta condición se cumple, entonces la dosis es igual al kerma por colisiones (K_C) en ese punto esto

es, $D \stackrel{EPC}{=} K_C$. La dosis se puede escribir en términos del coeficiente másico de absorción de energía como sigue:

$$D \stackrel{EPC}{=} K_C = \Psi \left(\frac{\mu_{en}}{\rho} \right) \quad (\text{A.9})$$

Apéndice B

Deducción de las ecuaciones de Kitis a partir de los modelos de Randall-Wilkins, Garlic-Gibson y May-Partridge

Apéndice B

En este apéndice se presenta el desarrollo de las ecuaciones de Kitis a partir de los modelos propuestos por: Randall y Wilkins, Garlick y Gibson y May y Partridge, que tienen las siguientes expresiones:

a) Randall y Wilkins;

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = -s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] n = n_0 s \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \exp\left[\left(-\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT\right]$$

b) Garlick y Gibson;

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = -s' \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] n^2 = \frac{n_0^2 s' \exp\left[-\frac{E}{kT}\right]}{\left[1 + \left(\frac{s' n_0}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT\right]^2}$$

c) May y Partridge;

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

Los modelos anteriores están en función de la concentración inicial de portadores de carga n_0 , constante de Boltzman k , energía de activación E , factor de frecuencia s , factor pre-exponencial s' y del orden de la cinética b para un pico de brillo. Para cada modelo Kitis construyo una ecuación que está en función de la intensidad máxima I_M de un pico de brillo y su temperatura asociada T_M , k , E , y b . Para esto es necesario resolver la siguiente integral que sólo puede ser resuelta numéricamente [36]:

Apéndice B

Deducción de las ecuaciones de Kitis a partir de los modelos de Randall-Wilkins, Garlic-Gibson y May-Partridge

$$F(T, E) = \int_{T_0}^T \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] dT \quad (\text{B.1})$$

Sin embargo, con integraciones sucesivas por partes se encuentra que,

$$F(T, E) = T \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \left[\sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{-kT}{E}\right)^n (-1)^n n! \right] \quad (\text{B.2})$$

Tomando una aproximación de segundo orden, se tiene que:

$$F(T, E) = \frac{kT^2}{E} \exp\left[-\frac{E}{kT}\right] \left(1 - \frac{2kT}{E}\right) \quad (\text{B.3})$$

Ahora se sustituirá la aproximación dada por la ecuación (B.3) en los modelos de primer, segundo y orden general.

1.-Función para una cinética de primer orden

Usando la aproximación B.3 en la ecuación 1.16 se obtiene:

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-\frac{skT^2}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left(1 - \frac{2E}{kT}\right)\right] \quad (\text{B.4})$$

Calculando el máximo de la función de la ecuación B.4, se tiene que;

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \exp\left(\frac{E}{kT_M}\right) \quad (\text{B.5})$$

Sustituyendo en la ecuación B.4

$$I(T) = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \exp\left[\frac{E}{kT} \left(\frac{T - T_M}{T_M}\right)\right] \exp\left\{-\frac{T^2}{T_M^2} \exp\left[\frac{E}{kT} \left(\frac{T - T_M}{T_M}\right)\right] (1 - \Delta)\right\} \quad (\text{B.6})$$

donde $\Delta = \frac{2kT}{E}$ la intensidad máxima del pico está dada por:

$$I_M = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \exp[-(1 - \Delta_M)] \quad (\text{B.7})$$

Apéndice B

Deducción de las ecuaciones de Kitis a partir de los modelos de Randall-Wilkins, Garlic-Gibson y May-Partridge

$$\text{Donde } \Delta_M = \frac{2kT_M}{E}$$

Sustituyendo B.7 en B.6 se tiene que:

$$I(T) = I_M \exp \left[1 - \frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} - \frac{T^2}{T_M} \exp \left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M} \right) (1 - \Delta) - \Delta_M \right] \quad (\text{B.8})$$

2.-Función para una cinética de segundo orden

Sustituyendo la ecuación B.3 en 1.20 se tiene que:

$$I(T) = n_0 s \exp \left(-\frac{E}{kT} \right) \exp \left[\frac{skT^2}{\beta E} \exp \left(-\frac{E}{kT} \right) (1 - \Delta) + 1 \right]^{-2} \quad (\text{B.9})$$

Análogamente la condición del máximo está dada por:

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} \exp \left(\frac{E}{kT_M} \right) \quad (\text{B.10})$$

Sustituyendo en la ecuación B.9

$$I(T) = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} \exp \left[\frac{E}{kT} \left(\frac{T - T_M}{T_M} \right) \right] \left\{ \frac{T^2}{T_M^2} \frac{1 - \Delta}{1 + \Delta_M} \exp \left[\frac{E}{kT} \left(\frac{T - T_M}{T_M} \right) \right] + 1 \right\}^{-2} \quad (\text{B.11})$$

la intensidad máxima para un pico de segundo orden está dada por:

$$I_M = n_0 s \exp \left(-\frac{E}{kT_M} \right) \left[\frac{skT_M^2}{\beta E} \exp \left(-\frac{E}{kT_M} \right) (1 - \Delta_M) + 1 \right]^{-2} \quad (\text{B.12})$$

Sustituyendo B.12 en B.11 se obtiene

$$I_M = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} \left(\frac{2}{1 + \Delta_M} \right)^{-2} \quad (\text{B.13})$$

Arreglando términos semejantes se tiene que:

Apéndice B

Deducción de las ecuaciones de Kitis a partir de los modelos de Randall-Wilkins, Garlic-Gibson y May-Partridge

$$I(T) = 4I_M \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_M}{T_M}\right) \left[\frac{T^2}{T_M^2} (1-\Delta) \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_M}{T_M}\right) + 1 + \Delta_M \right]^{-2} \quad (\text{B.14})$$

3.-Función para una cinética de orden general

Análogamente sustituyendo la ecuación B.3 en la 1.23 se tiene que;

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[\frac{(b-1)skT^2}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) (1-\Delta) + 1 \right]^{\frac{b}{b-1}} \quad (\text{B.15})$$

la intensidad máxima para un pico de orden general esta dada por:

$$I_M = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \left[\frac{(b-1)skT_M^2}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) (1-\Delta_M) + 1 \right]^{\frac{b}{b-1}} \quad (\text{B.16})$$

La condición para el máximo esta dada por:

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{Z_M} \exp\left(\frac{E}{kT_M}\right) \quad (\text{B.17})$$

$$\text{Donde } Z_M = 1 + (b-1)\Delta_M$$

Sustituyendo Z_M y la ecuación B.17 en la ecuación B.16 se obtiene

$$I(T) = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{Z_M} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_M}{T_M}\right) \left[\frac{(b-1) T^2}{Z_M T_M^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_M}{T_M}\right) (1-\Delta) + 1 \right]^{\frac{b}{b-1}} \quad (\text{B.18})$$

la intensidad máxima para un pico de orden general está dada por

$$I_M = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{Z_M} \left(\frac{b}{Z_M} \right)^{\frac{-b}{b-1}} \quad (\text{B.19})$$

Sustituyendo la ecuación B.19 en B.18, se obtiene;

Apéndice B

Deducción de las ecuaciones de Kitis a partir de los modelos de Randall-Wilkins, Garlic-Gibson y May-Partridge

$$I(T) = I_M (b)^{\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_M}{T_M}\right) \left[(b-1)(1-\Delta) \frac{T^2}{T_M^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_M}{T_M}\right) + Z_M \right]^{\frac{-b}{b-1}} \quad (\text{B.20})$$

Apéndice C

Solución analítica de la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo para un pozo de potencial cuadrado

Apéndice C

En este apéndice se presentan las soluciones de la ecuación de Schrödinger para un pozo de potencial cuadrado para calcular el valor de las energías del centro F, a partir del modelo de Boer.

La ecuación de Schrödinger para este modelo está dada por [16]:

$$\bar{\nabla}^2 \Psi + \frac{2m}{\hbar^2} (E - U) \Psi = 0$$

con la siguiente condición:

$$U(x) = \begin{cases} U_0, & \text{para } x < -a/2 \\ 0, & \text{para } |x| < a/2 \end{cases}$$

Las soluciones de la ecuación de Schrödinger para cada una de las regiones están dadas por:

$$\Psi(x) = A_2 \text{sen}(k_I x) + B_2 \text{cos}(k_I x), \quad \text{para } -a/2 < x < a/2 \quad (\text{C.1})$$

$$\Psi(x) = C e^{k_{II} x} + D e^{-k_{II} x}, \quad \text{para } x < -a/2 \quad (\text{C.2})$$

$$\Psi(x) = F e^{k_{II} x} + G e^{-k_{II} x}, \quad \text{para } x > a/2 \quad (\text{C.3})$$

Donde;

$$k_I = \sqrt{\frac{2mE}{\hbar}}, \quad (\text{C.4})$$

$$k_{II} = \sqrt{\frac{2m(U_0 - E)}{\hbar}} \quad (\text{C.5})$$

Usando las condiciones de continuidad de Ψ y Ψ' en las fronteras

Apéndice C

Solución analítica de la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo para un pozo de potencial cuadrado

$x = a/2$ y $x = -a/2$ se obtiene;

$$-A \operatorname{sen}(k_I a/2) + B \cos(k_I a/2) = C e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.6})$$

$$A k_I \cos(k_I a/2) + B k_I \operatorname{sen}(k_I a/2) = C k_{II} e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.7})$$

$$A \operatorname{sen}(k_I a/2) + B \cos(k_I a/2) = G e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.8})$$

$$A k_I \cos(k_I a/2) + B k_I \operatorname{sen}(k_I a/2) = -G k_{II} e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.9})$$

restando C.7 de C.9 se obtiene

$$2A \operatorname{sen}(k_I a/2) = (G - C) e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.10})$$

Sumando C.7 y C.9 se obtiene

$$2B \cos(k_I a/2) = (G + C) e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.11})$$

Restando C.8 de C.6

$$2B k_I \operatorname{sen}(k_I a/2) = (G + C) k_{II} e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.12})$$

Sumando C.8 y C.6

$$2A k_I \cos(k_I a/2) = -(G - C) k_{II} e^{-k_{II} a/2} \quad (\text{C.13})$$

Tomando $B \neq 0$ y $(G+C) \neq 0$ se puede dividir C.13 entre C.12 y obtener

$$k_I \tan(k_I a/2) = k_{II} \quad (\text{C.14})$$

Tomando $A \neq 0$ y $(G-C) \neq 0$ se puede dividir C.11 entre C.10 y resultando

$$k_I \cot(k_I a/2) = -k_{II} \quad (\text{C.15})$$

Así las ecuaciones (C.14) y (C.15) no se pueden satisfacer simultáneamente, si fuera posible la suma tendría la forma:

$$k_I \tan(k_I a/2) + k_I \cot(k_I a/2) = 0 \quad (\text{C.16})$$

Apéndice C

Solución analítica de la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo para un pozo de potencial cuadrado

Multiplicando la ecuación (C.16) por $\tan(k_1 a / 2)$ la ecuación resultante sería

$$\begin{aligned} k_1 \tan^2(k_1 a / 2) + k_1 &= 0 \\ \tan^2(k_1 a / 2) &= -1 \end{aligned} \tag{C.17}$$

La ecuación (C.17) no puede ser válida si tanto k_1 como $a/2$ son reales.

Entonces, solamente es posible que satisfice C.14 pero no C.15, o no satisface C.14 pero si C.15. Las funciones propias del pozo de potencial cuadrado forman dos clases. Por lo tanto se tomara la ecuación (C.14) para las soluciones de primera clase y resolviéndola resulta que;

$$\begin{aligned} B \cos(k_1 a / 2) &= G e^{-k_1 a / 2} \\ G &= B \cos(k_1 a / 2) e^{k_1 a / 2} = C \end{aligned}$$

y las funciones propias son

$$\begin{aligned} \Psi(x) &= [B \cos(k_1 a / 2) e^{k_1 a / 2}] e^{k_1 x}, \text{ para } x < -a / 2 \\ \Psi(x) &= B \cos(k_1 x), \text{ para } -a / 2 < x < a / 2 \\ \Psi(x) &= [B \cos(k_1 a / 2) e^{k_1 a / 2}] e^{-k_1 x}, \text{ para } x > a / 2 \end{aligned} \tag{C.18}$$

Análogamente resolviendo la ecuación (C.15) resulta que;

$$\begin{aligned} A \operatorname{sen}(k_1 a / 2) &= G e^{-k_1 a / 2} \\ G &= A \operatorname{sen}(k_1 a / 2) e^{k_1 a / 2} = -C \end{aligned}$$

y las funciones propias son

$$\begin{aligned} \Psi(x) &= [-A \operatorname{sen}(k_1 a / 2) e^{k_1 a / 2}] e^{k_1 x}, \text{ para } x < -a / 2 \\ \Psi(x) &= A \operatorname{sen}(k_1 x), \text{ para } -a / 2 < x < a / 2 \\ \Psi(x) &= [B \operatorname{sen}(k_1 a / 2) e^{k_1 a / 2}] e^{-k_1 x}, \text{ para } x > a / 2 \end{aligned} \tag{C.19}$$

Para la primera clase se tiene que

Apéndice C

Solución analítica de la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo para un pozo de potencial cuadrado

$k_I \tan(k_I a / 2) = k_{II}$ y evaluando k_I y k_{II} se obtiene;

$$\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2} \tan(\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2}) = \sqrt{ma^2(U_0 - E) / 2\hbar^2} \quad (\text{C.20})$$

Donde;

$$p(E) = \sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2} \tan(\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2})$$

$$q(E) = \sqrt{m(U_0 - E)a^2 / 2\hbar^2}$$

Análogamente para la segunda clase

$$-\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2} \cot(\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2}) = \sqrt{ma^2(U_0 - E) / 2\hbar^2} \quad (\text{C.21})$$

Donde

$$p1(E) = -\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2} \cot(\sqrt{mEa^2 / 2\hbar^2})$$

$$q1(E) = \sqrt{ma^2(U_0 - E) / 2\hbar^2}$$

Thermoluminescent properties of NaCl monocrystal double doped with CaCl₂ and CdCl₂

A. ORTIZ MORALES†, C. FURETTA*†, G. KITIS‡, A. NEGRON MENDOZA† and E. CRUZ ZARAGOZA†

†Instituto de Ciencias Nucleares, Universidad Nacional Autonoma de Mexico, Circuito Exterior C.U., A. Postal 70-543, 04510 Mexico DF, Mexico

‡Nuclear Physics Laboratory, Aristotle University of Thessaloniki, 54006 Thessaloniki, Greece

(Received 8 April; in final form 20 April 2006)

Keywords: Thermoluminescent; Monocrystal; NaCl

1. Introduction

In the frame for searching new and very sensitive thermoluminescent (TL) materials for their use in dosimetric applications, this paper reports the TL properties of a new production of monocrystal NaCl, doubly activated by Ca and Cd in various concentrations.

This TL material could be interesting for measurements in clinical dosimetry, *i.e.* radio therapy and radio diagnostic, for its effective atomic number, Z_{eff} , which is 15.2, similar to the one of the bones.

This paper reports the results concerning the TL response as a function of the absorbed dose and its analysis based on the track model [1–4], fading characteristics, kinetic parameters using the computerized glow curve deconvolution (CGCD) and some optical measurements.

2. Materials and methods

Single crystals of NaCl doped with manganese and calcium in different concentrations, according to table 1, were grown at the Crystal Growth Laboratory of the Physics Institute of UNAM; the growth was performed using the Czochralsky method. To eliminate any impurities in the crystals, an inert atmosphere of dry argon was maintained during the growing procedure.

*Corresponding author. Email: c.furetta@alice.it

Table 1. Dopants and their concentrations for each preparation.

Preparation	Dopants
A	CdCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.5%)
B	CdCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.1%)
C	CaCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.1%)
D	CaCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.3%)

The dopants, in proper amounts, were added to the molten matrix (melting point equal to 1077 K). The final concentration of the impurities was determined by atomic absorption spectrophotometry. Thermal quenching was obtained by heating the as-grown samples for 1 h at 500 °C and then rapidly cooling down to room temperature (RT), ~298 K, on a copper block. The samples studied for this work were prepared in four different combinations of dopant concentrations, as shown in table 1. The samples were totally transparent, having dimension 4 × 4 × 0.3 mm.

The samples were irradiated using two ⁶⁰Co sources, under the build-up conditions:

- Gammacell 200, with a dose rate of 0.66 Gy/min, and
- Gammabeam 650PT, with dose rates of 0.563, 2.405 and 4.153 kGy/h.

The dosimetry was performed at RT using a Fricke dosimeter.

The TL reading system was a Harshaw TL reader, mod. 3500, with a constant heating rate of 2 °C/s; nitrogen gas was allowed to flow into the reading chamber during read-out to avoid any spurious signals. The TL emission was integrated from RT to 673 K.

3. Experimental results

3.1 TL vs. dose

The TL response as a function of the given dose was performed using several samples at each dose level figure 1 shows the TL vs. dose behavior, for the four preparations, in the whole range of the given doses. Superlinearity seems to start at very low doses. Because of this anomalous behavior, a deep analysis of the TL vs. dose–response is given further on in this paper.

Figure 2 shows the combined effect of the dopant concentration–dose on the crystalline matrix: it can be very well seen that as the dose increases, the glow curves are strongly distorted. For preparations A and B, for example, the glow curves show the same structures up to 160 Gy; after that, the new peaks start to grow and the main peak at 174 °C shows a shoulder on its high temperature side. At 160 Gy, the main peak shows a double structure, revealing two trapping levels very close to each other.

The behavior of preparations C and D is a little bit less complex: the main peak (at ~200 °C) remains more or less isolated, although a shoulder on its ascending part can be observed, as the dose reaches the maximum level, *i.e.* 640 Gy.

3.2 Fading

The fading effect was studied over a period of 120 days, at RT and in dark conditions.

Several samples of preparations A, B, C and D were annealed at 500 °C for 1 h and, after cooling down to the RT, were irradiated at a test dose of ~30 Gy at different times during 120 days, then stored in a black box at RT. All the samples were then read-out at the end of

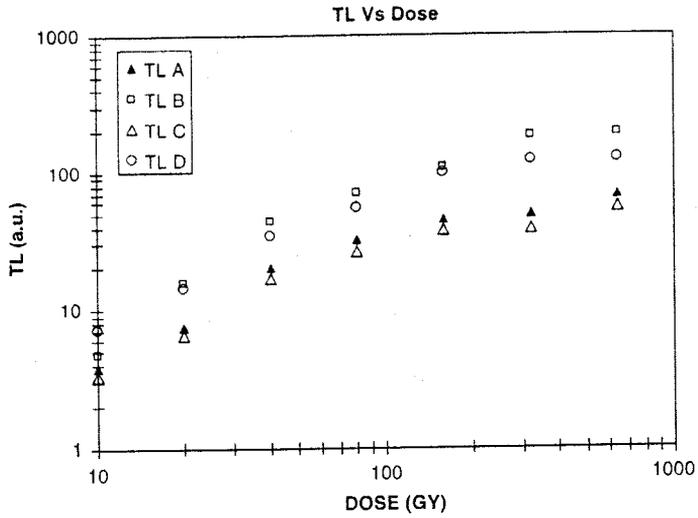


Figure 1. TL response as a function of the given doses for the four preparations.

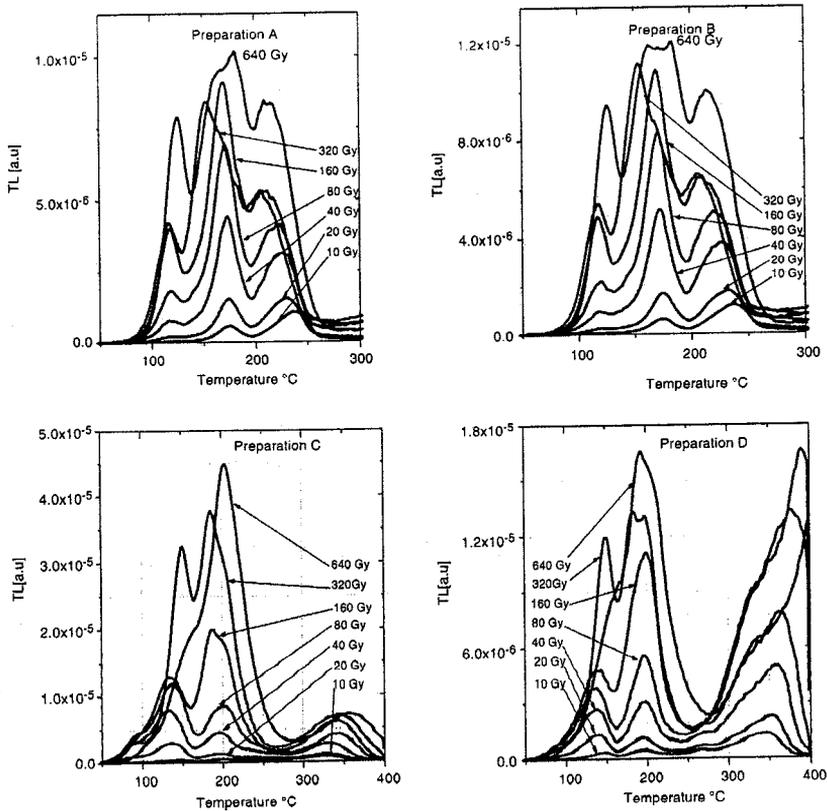


Figure 2. Concentration-dose effect on crystalline matrix. The doses were 10, 20, 40, 80, 160, 320 and 640 Gy.

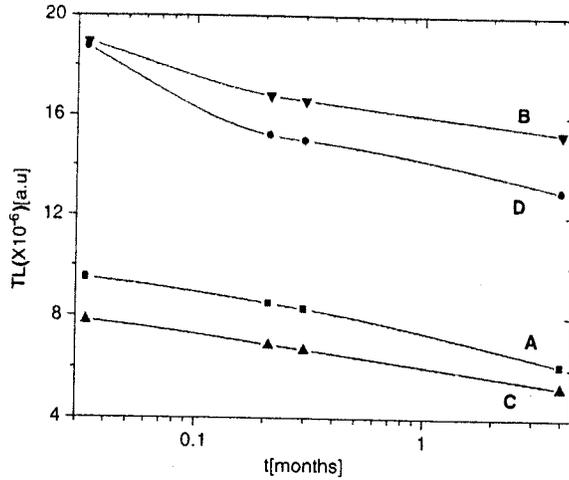


Figure 3. Fading at RT.

the 120 days in only one session. Figure 3 shows the behavior of the fading. The loss of the information ranges between 20% and 30% at the end of the observation period.

3.3 Optical properties

The absorption bands present their maximum at a wavelength of ~ 460 nm (F center). The absorption coefficient α_F , for the four preparations, is plotted against the dose and as a function of the dose rate in figure 4. The same figures give an indication of the increase in the number of F centers as the dose increases.

3.4 Kinetic parameters

An experimental TL peak can be mathematically described by the Randall–Wilkins equation for the first-order kinetics, when retrapping is absent [5]:

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

or by the Garlick–Gibson equation for the second order, when retrapping is present [5]:

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

or, finally, by the May–Partridge general-order equation, in intermediate cases [5]:

$$I(T) = s'' n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s''(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-b/(b-1)} \quad (3)$$

where b is the kinetics order, being $1 < b \leq 2$.

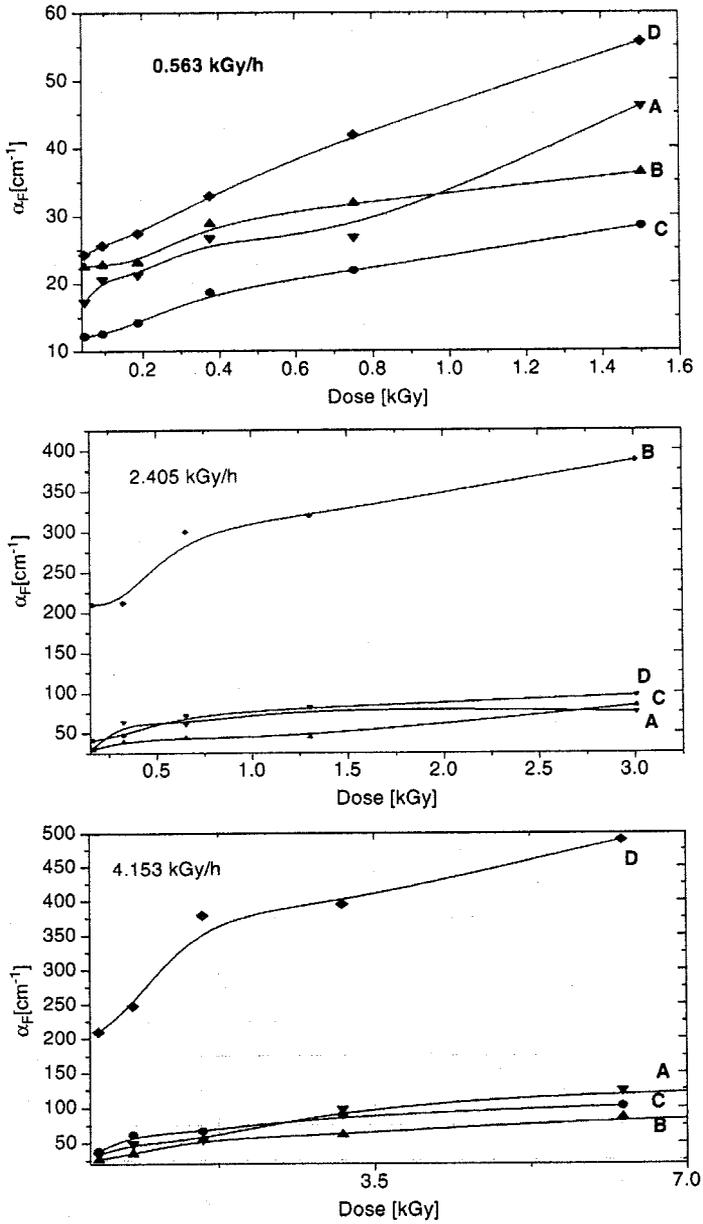


Figure 4. F-centers growth as a function of dose.

The kinetics data have been obtained using the CGCD. The previous equations have been modified according to the following glow peak algorithms for first- and general-order kinetics [6, 7]:

1. for the first order

$$I(I_M, T_M, E, T) = I_M \exp \left[1 + u - \frac{T^2}{T_M^2} \exp(u)(1 - \Delta) - \Delta_M \right] \quad (4)$$

where E is the activation energy, I_M and T_M the intensity and temperature at the peak maximum, respectively, $u = E(T - T_M)/kT T_M$, $\Delta = kT/E$ and $\Delta_M = kT_M/E$ and k the Boltzmann's constant;

2. for the general order

$$I(I_M, T_M, E, T) = I_M b^{b/(b-1)} \exp(u) \left[(b-1)(1-\Delta) \frac{T^2}{T_M^2} \exp(u) + Z_M \right]^{-b/(b-1)} \quad (5)$$

where $Z_M = 1 + (b-1)\Delta_M$.

Equation (5) reduces to the second-order kinetics for $b = 2$.

The corresponding frequency factors, s , can be obtained by the following expressions [5]:

1. first order

$$\frac{\beta E}{k T_M^2} = s \exp \left(-\frac{E}{k T_M} \right) \quad (6)$$

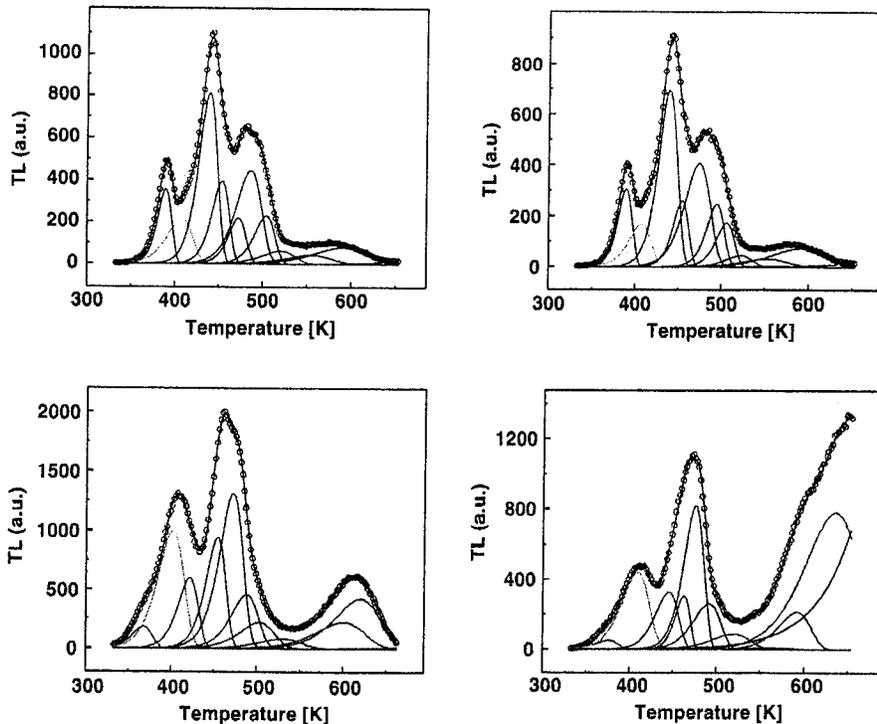


Figure 5. Experimental and deconvoluted glow curves for the four preparations. Irradiation dose: 160 Gy.

2. general order

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = [1 + (b-1)\Delta_M]s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \quad (7)$$

The curve-fitting procedure was performed using the MINUIT program [8] and the goodness of the fit was tested with the figure of merit (FOM) [9] given by

$$\text{FOM} = \sum_j \frac{100|y_j - y(x_j)|}{A} \quad (8)$$

Table 2. Kinetic parameters of the four preparations.

Peak	Integral	Intensity	T-Max	E	S
Preparation A: NaCl: CdCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.5%), FOM = 0.0126					
1	3.72E + 03	3.26E + 02	389.71	1.6492	5.37E + 20
2	4.05E + 03	2.00E + 02	407.82	0.9912	2.46E + 11
3	1.11E + 04	7.41E + 02	439.13	1.5849	2.96E + 17
4	5.09E + 03	3.60E + 02	453.49	1.7996	2.03E + 19
5	2.91E + 03	2.00E + 02	472.64	1.9	3.59E + 19
6	8.28E + 03	4.05E + 02	486.13	1.4118	6.00E + 13
7	3.46E + 03	2.10E + 02	503.86	1.9	1.76E + 18
8	1.52E + 03	5.64E + 01	520	1.213	5.94E + 10
9	1.42E + 03	3.87E + 01	554.61	1	9.23E + 07
10	3.00E + 03	7.27E + 01	590	1	2.33E + 07
Preparation B: NaCl: CdCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.1%), FOM = 0.0119					
1	2.70E + 03	9.25E + 01	367.69	0.9996	8.63E + 12
2	1.95E + 04	4.99E + 02	401.63	0.9	2.55E + 10
3	9.13E + 03	3.00E + 02	421.61	1.3	5.89E + 14
4	1.42E + 04	4.71E + 02	453.96	1.5311	1.72E + 16
5	2.35E + 04	6.57E + 02	471.91	1.3833	8.55E + 13
6	9.24E + 03	2.28E + 02	488.1	1.3	3.36E + 12
7	5.59E + 03	1.10E + 02	503	1.0875	7.87E + 09
8	2.49E + 03	4.10E + 01	530.17	1	2.65E + 08
9	8.09E + 03	1.12E + 02	600	1.0796	8.16E + 07
10	1.41E + 04	2.13E + 02	619.56	1.2569	1.28E + 09
Preparation C: NaCl: CaCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.1%), FOM = 0.0149					
1	3.32E + 03	3.37E + 02	389.71	1.5809	6.74E + 19
2	2.78E + 03	1.84E + 02	407.42	1.1056	7.34E + 12
3	9.77E + 03	7.66E + 02	439.36	1.5436	9.44E + 16
4	3.05E + 03	2.87E + 02	454.28	2	3.48E + 21
5	7.80E + 03	4.48E + 02	474.13	1.3002	8.90E + 12
6	3.26E + 03	2.72E + 02	494.68	2.0991	4.85E + 20
7	2.39E + 03	1.91E + 02	506.12	2.1	1.55E + 20
8	8.79E + 02	4.95E + 01	522.52	1.5624	1.56E + 14
9	1.02E + 03	3.38E + 01	553.08	1.0005	9.94E + 07
10	2.74E + 03	8.03E + 01	590	1	2.33E + 07
Preparation D: NaCl: CaCl ₂ (1%), MnCl ₂ (0.3%), FOM = 0.0155					
1	9.08E + 02	4.85E + 01	375.64	0.9016	1.85E + 11
2	8.98E + 03	3.99E + 02	408.9	0.9002	1.56E + 10
3	5.63E + 03	3.00E + 02	445	1.3008	8.24E + 13
4	3.42E + 03	2.80E + 02	462.56	2.1977	2.10E + 23
5	1.23E + 04	7.40E + 02	475.41	1.6972	1.71E + 17
6	5.41E + 03	2.38E + 02	491.28	1.3023	2.87E + 12
7	2.62E + 03	8.07E + 01	519.29	1.0011	4.48E + 08
8	3.95E + 02	1.05E + 01	559.96	1.0028	7.89E + 07
9	5.11E + 03	1.94E + 02	591.85	1.6386	9.76E + 12
10	2.53E + 04	7.04E + 02	634.79	1.0937	3.04E + 07

where j_i and j_f are the first and the last channels, respectively, of the region of interest, y_j and $y(x_j)$ are the TL emission and the corresponding function in the channel j , respectively, and A is the integral of the TL curve in the whole region of interest. An FOM equal or less than 5% means a very good fitting. Figure 5 shows the experimental glow curves and the deconvoluted peaks, and table 2 shows the kinetic parameters.

4. Discussion and conclusions

The first action on a TL dose–response curve of a material is to find whether this material grows linearly as a function of dose. This is achieved by evaluating the supralinearity index, which is given by relation [10]:

$$f(D) = \frac{TL/D}{TL_1/D_1} \quad (9)$$

where TL is the TL signal for a dose D and TL_1 is the TL signal at some low dose D in the linear TL dose–response region. The existence of a linear dose region in the low dose is necessary in order the $f(D)$ index to represent correctly the behavior of the material. The values of $f(D)$ obtained showed that all the materials do not have, in fact, a linear region, but they are supralinear at the even lowest doses, becoming sublinear afterwards. In this case, another index called superlinearity index $g(D)$ [10] is more appropriate to describe the TL dose–response curves. Indeed, it gives the indication of the change in the slope of the dose–response. However, the evaluation of this index requires to find an analytical expression, $TL(D)$, for the TL dose–response curve. Once the $TL(D)$ function is found, then the $g(D)$ index will be given by equation (10):

$$g(D) = \frac{D \cdot TL''(D)}{TL'(D)} + 1 \quad (10)$$

where $TL'(D)$ and $TL''(D)$ are the first and second derivatives of the TL dose–response function $TL(D)$, respectively.

The $TL(D)$ function used to fit the experimental TL dose curves arose from the track structure theory of Waligorski and co-workers [1–4]. Its analytical expression is given by the following equation, which, in fact, is the sum of two saturating exponentials:

$$TL(D) = TL_1 \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{D}{E01}\right)\right) + TL_2 \cdot \left(1 - \left(1 + \frac{D}{E02}\right) \cdot \exp\left(-\frac{D}{E02}\right)\right) \quad (11)$$

where TL_1 and TL_2 are the TL contributions of each saturating exponential and $E01$ and $E02$ are the saturation doses of each contribution, respectively.

The reason for selecting a double saturating exponential curve instead of a single one is that in the case of a single exponential, the $g(D)$ index, according to equation (10), will be $g(D) = 1 - (D/E01)$, which means that $g(D)$ will be always less than unity, which is not in agreement with the found $f(D)$ values greater than unity at low doses.

The first derivative of equation (11) is:

$$TL'(D) = TL_1 \cdot \frac{1}{E01} \cdot \exp\left(-\frac{D}{E01}\right) + TL_2 \cdot \left(\frac{1}{E02}\right)^2 \cdot D \cdot \exp\left(-\frac{D}{E02}\right) \quad (12)$$

The second derivative is:

$$TL''(D) = -TL_1 \cdot \left(\frac{1}{E01}\right)^2 \cdot \exp\left(-\frac{D}{E01}\right) + TL_2 \cdot \left(\frac{1}{E02}\right)^2 \cdot \left(1 - \frac{D}{E02}\right) \cdot \exp\left(-\frac{D}{E02}\right) \quad (13)$$

Table 3. Fitting parameters to the graphs of figure 6.

Sample	TL ₁	E01	TL ₂	E0 ₂
A	13.18	39.9	39.76	45.81
B	266.8	2170	116	35.8
C	10.47	35.37	34.25	44.98
D	34.79	50.98	85.51	61.2

Once the experimental data were fitted to equation (11), the $g(D)$ index was evaluated through equations (10), (12) and (13). Table 3 reports the fitting parameters of equation (11).

The TL dose-response curves of double-doped NaCl are shown in figure 6 for each one of the doping cases. The solid circles are the experimental points and the solid line the fit with equation (11) as well as the contribution of each saturating exponential to the total TL dose-response curve.

The upper part of figure 7 shows the behavior of the $f(D)$ index for all doping cases. The doping cases (a), (c) and (d) have exactly the same behavior with the $f(D)$ index being slightly higher than unity between 10 and 100 Gy and lesser than unity at higher dose. The doping case (b) is strongly differentiated by showing an intense supralinearity even at the lowest dose.

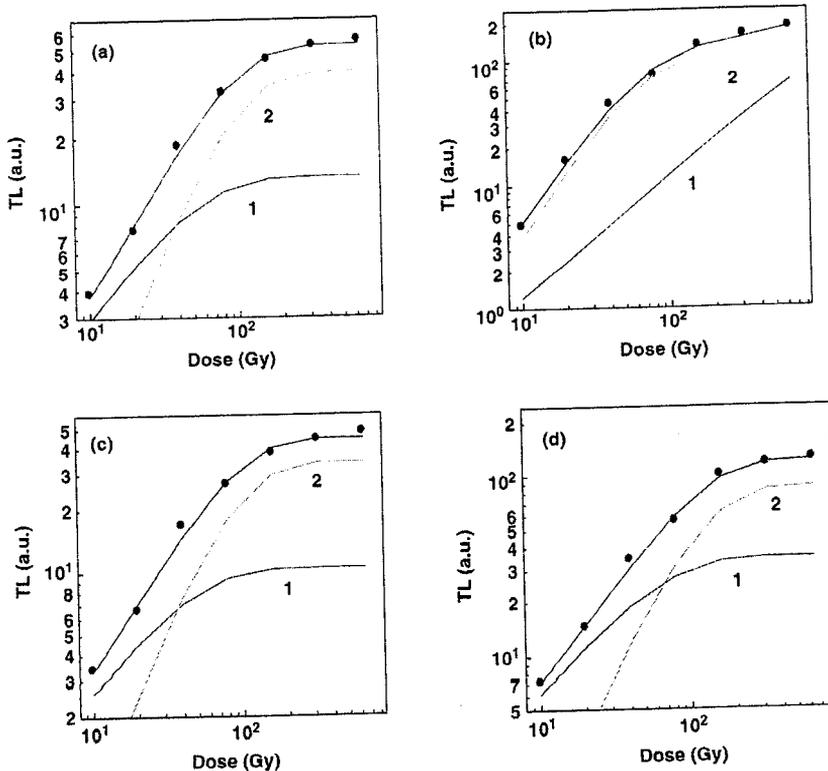


Figure 6. TL dose-response curve of NaCl using equation (11). Solid circles are the experimental points and solid line is the fit. Curve 1 corresponds to the first saturating exponential term of equation (11) and curve 2 to the second saturating exponential: (a) for activator A, (b) for activator B, (c) for activator C and (d) for activator D.

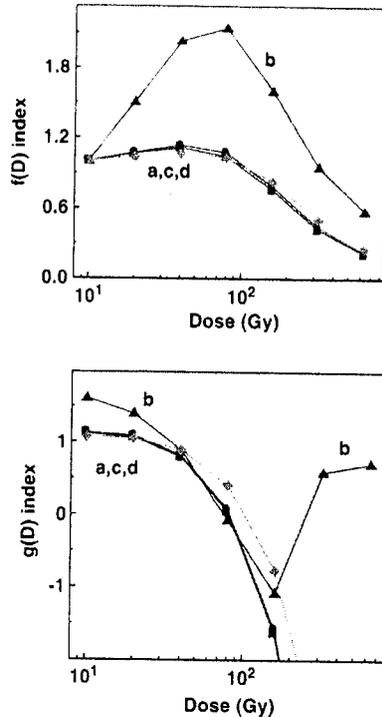


Figure 7. Upper part: behavior of the $f(D)$ index as a function of dose. Lower part: behavior of the $g(D)$ index as a function of dose. The curves (a), (b), (c) and (d) correspond to each preparation A, B, C and D, respectively.

The lower part of figure 7 shows the behavior of the $g(D)$ index for all doping cases. The $g(D)$ values are slightly greater than unity at the beginning in all doping cases, which means that the superlinearity in these materials appears from the lowest dose. As the dose increases, the $g(D)$ values become less than unity, which means sublinear behavior; as the dose exceeds 100 Gy, the $g(D)$ values become negative. The negative values of $g(D)$ should be considered as a practical limit for the use of a saturating exponential function to simulate the TL dose-response curves of various TL materials in order to evaluate the dose. Anyway, this material, which has not a clear linear TL dose-response behavior, cannot be rejected for application in dosimetry, because the saturating exponential function may serve as a dose calibration curve.

Acknowledgements

This work was supported by a grant from CONACYT project number 191593, and by DGEP-UNAM. The authors wish to thank Physics Francisco Garcia and Mr Francisco Isidoro for their technical assistance.

References

- [1] L. Larson and R. Katz, Nucl. Instr. Methods **138** 631 (1976).
- [2] M.P.R. Waligorski and R. Katz, Nucl. Instr. Methods **172** 463 (1980).
- [3] M.P.R. Waligorski and R. Katz, Nucl. Instr. Methods **175** 48 (1980).

- [4] M.P.R. Waligorski, P. Olko, P. Bilski *et al.*, *Radiat. Prot. Dosimetry* **47** 53 (1993).
- [5] C. Furetta and G. Kitis, *J. Mater. Sci.* **39** 2277 (2004).
- [6] G. Kitis and J.M. Gomez-Ros, *Nucl. Instr. Methods A* **440** 224 (2000).
- [7] J.M. Gomez-Ros and G. Kitis, *Radiat. Prot. Dosimetry* **101** 47 (2002)
- [8] F. James and M. Roos, CERN program library entry. Available online at: [d506\\http://consult.cern.ch/writeups/minuit](http://d506.cern.ch/writeups/minuit).
- [9] H.G. Balian and N.W. Eddy, *Nucl. Instr. Methods* **145** 389 (1977).
- [10] R. Chen and W.S. McKeever, *Rad. Meas.* **23** 667 (1994).