UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO

FACULTAD DE CIENCIAS

ESTUDIO DE LA RESPUESTA SUBLINEAL DE TLD-100 A

PROTONES Y CARBONOS DE BAJA ENERGIA Autorizo a la Dirección General de Bibliotecas do la UNAM a dilundir an tormato electronico e impresi: el contenido de mi trabajo recepcional. NOMHIRE: HECTOR AUTO FECHA: 24 Suno 2003 FILMAN: HECTOR AUTO

| T | E | | S | | | I | | \mathbf{S} |
|-----|------|-----|---------|----|----|--------|-----|--------------|
| QUE | PARA | | OBTENER | | EL | TTTULO | | DE: |
| F | ł | I | S | | I | С | | 0 |
| Р | R | E | S | E | N | т | • | : |
| ΗE | ст | 0 R |)AL | VA | S | ANC |) н | ΕZ |
| | | | | | | | - | |





3





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.



Zhiversidat Nacional Aven maidi Mezette

DRA. MARÍA DE LOURDES ESTEVA PERALTA Jefa de la División de Estudios Profesionales de la Facultad de Ciencias Presente



Comunicamos a usted que hemos revisado el trabajo escrito: Estudio de la respuesta sublineal de TLD-100 a protones y carbonos de baja energía

realizado por Alva Sánchez Héctor

con número de cuenta 09756863-2

, quien cubrió los créditos de la carrera de: Física.

Dicho trabajo cuenta con nuestro voto aprobatorio.

Atentamente

| Director de | Tesis |
|-------------|--|
| Propietario | 2 hr |
| | Dra. Mercedes Rodríguez Villafuerte |
| Propietario | - Child |
| . | Dra. Olga Leticia Avila Aguirre |
| Propietario | And the second second second |
| - · · | Dra. Maria Isabel Gamboa de Buen |
| Suplente | M. en C. Patricia Raquel Avilés Mandujano Pahin A. |
| Suplente | |
| | Dr. Javier Miranda Martín del Campo |

Consejo Departamental de Fisica Blash. 1441010 DRA. PATRICIA GOLDSTEIN MENACHE

DRA. PATRICIN GOLDSTIIN MENACHE Coordinadora de Licenciatura desclas PLIMATASEATU DE FISICA

T - 1

A mis padres

Carlos Alva Espinosa María de Lourdes Sánchez y a mi hermano Adrián Alva

A Lore

A la Dra. Mercedes Rodríguez Villafuerte por la dirección de esta tesis, por la simulación Monte Carlo, por su paciencia y amistad.

Al comité sinodal por la minuciosa y dedicada revisión de este trabajo:

- Dra. Mercedes Rodríguez Villafuerte
- Dra. Isabel Gamboa de Buen
- Dra. Olga Ávila Aguirre
- M. en C. Patricia Avilés Mandujano
- Dr. Javier Miranda Martín del Campo

A la Dra. Isabel Gamboa por su enorme ayuda con la deconvoluciones, las irradiaciones en el GammaCell, comentarios y sugerencias indispensables para la elaboración de este trabajo.

A la Dra. Olga Ávila por la simulación Monte Carlo de las distribuciones radiales de dosis.

A la Dra. María Ester Brandan por su apoyo, asesoría, y revisión de este trabajo.

A la M. en C. Ana Elena Buenfil por sus enseñanzas, motivación y su tiempo.

Al M. en C. Cesar Ruiz por sus consejos y valiosa ayuda durante las irradiaciones en el Peletrón.

A los compañeros del grupo de dosimetría.

A Karim López y Francisco Javier Jaimes por la operación del Peletrón.

Al Instituto de Ciencias Nucleares de la UNAM por las facilidades para las irradiaciones en el GammaCell.

Al Instituto de Física de la UNAM por concederme todas las facilidades para el uso de sus instalaciones y equipo.

A DGAPA-UNAM proyectos PAPIIT IN-101399 e IN-109302. A Conacyt 32226-E. A los proyectos Conacyt F036-E9109, G0010E y 40122-F que apoyan al acelerador Peletrón. A Probetel-UNAM.

I-3

INDICE

| 1. | Introducción | 1 |
|----|---|----|
| 2. | Interacción de la radiación con la materia | 5 |
| | 2.1 Interacción de las partículas cargadas pesadas con la materia | 5 |
| | 2.2 Interacción de electrones con la materia | 12 |
| | 2.3 Interacción de fotones con la materia | 14 |
| З. | Termoluminiscencia | 21 |
| | 3.1 Introducción | 21 |
| | 3.2 Defectos en cristales | 22 |
| | 3.3 El material LiF:Mg,Ti (TLD-100) | 23 |
| | 3.4 El proceso de la termoluminiscencia | 25 |
| | 3.5 Modelos para describir la termoluminiscencia | 28 |
| | 3.6 La función de supralinealidad | 32 |
| | 3.7 Irradiación con partículas cargadas pesadas | 33 |
| | 3.8 El modelo de interacción de trazas | 35 |
| | 3.8.1 Simulación Monte Carlo del TIM | 38 |
| | 3.9 El modelo de interacción de trazas extendido | 39 |
| | 3.9.1 Simulación Monte Carlo del ETIM. | 41 |
| | 3.10 Sensibilización de TLD-100 | 43 |
| 4. | Desarrollo experimental | 45 |
| | 4.1 Proceso de sensibilización | 45 |
| | 4.2 La irradiación | 46 |
| | 4.2.1 Cálculo de la fluencia | 48 |

i na seneral de la company de la company

| 그는 것 같은 사람이 많은 것을 많은 것을 많은 것을 많은 것을 다 가지 않는 것이 다 가지 않는 것 같이 가지 않는 것 같이 가지 않는 것을 하는 것 같이 가지? | a de la serie pour de la compañía. A la serie de la compañía de la compañía de la compañía de la compañía de la |
|--|--|
| 4.3 Lectura de los TLD-100 | 51 |
| 4.4 Deconvolución de las curvas de brillo | 53 |
| 4.5 Pérdida de energía de los iones | 57 |
| 5. Resultados | 65 |
| 5.1 Respuesta termoluminiscente como función de la fluencia | 65 |
| 5.2 La función de sublinealidad | 70 |
| 5.3 Resultados de la simulación Monte Carlo | 72 |
| 5.3.1 Distribuciones radiales de dosis | 72 |
| 5.3.2 Distribuciones radiales de probabilidad de ocupación | 78 |
| 5.3.3 Cálculo de la función de sublinealidad | 82 |
| 5.3.4 Comparación entre la simulación MC y el experimento | 85 |
| 6. Discusión y conclusiones | 89 |
| 6.1 Deconvolución de las curvas de brillo | 89 |
| 6.2 La función de sublinealidad | 92 |
| 6.3 La función de sublinealidad usando MC-ETIM | 93 |
| 6.4 Conclusiones | 93 |
| Apéndice I Fórmula general de propagación de incertidumbres y promedios pesados | 97 |
| Apéndice II Cambios en la curva de brillo de TLD-100 debido al proceso de sensibilización: Un estudio cualitativo | 99 |
| II.1 Motivación de este estudio | 99 |
| II.2 Preparación de los dosímetros TLD-100 | 101 |
| II.3 Irradiación de los dosímetros con partículas α | 101 |
| II.4 Lectura de los dosímetros | 102 |
| II.5 Resultados | 104 |
| II.6 Discusión y conclusiones | 116 |
| Referencias | 119 |
| 그는 이 것은 방법 방법을 받는 것이 같이 같이 가지 않는 것이 같이 있는 것이 가지 않는 것이 같이 있는 것이 있는 것이 없다. | e détaireada |

ii

Introducción

La termoluminiscencia (TL) es un fenómeno que ocurre en materiales cristalinos no metálicos, que después de haber sido irradiados con luz ultravioleta o radiación ionizante, al calentarse emiten luz, siendo ésta aproximadamente proporcional a la cantidad de energía depositada por la radiación a la que fueron expuestos. En este fenómeno el papel que juegan las impurezas y los defectos de los cristales se ha identificado como de gran relevancia. La importancia de su estudio está ligada al hecho de que algunos de estos materiales pueden utilizarse en dosimetría. El objetivo central de la dosimetría TL es determinar cuánta dosis fue absorbida por el material irradiado a través de la medición de la luz emitida.

Por definición, la dosis D es la cantidad de energía por unidad de masa que absorbe un material. La unidad de la dosis en el sistema internacional se define como 1 Gray (Gy) = 1 J/kg.

La dosimetría termoluminiscente requiere de un proceso de calibración de alta precisión de los dosímetros termoluminiscentes (TLDs). Este incluye la determinación de factores que tomen en cuenta los tratamientos térmicos previos a la irradiación, la dependencia de la respuesta con la dosis, el tipo de radiación y su energía, la pérdida espontánea de señal TL (desvanecimiento) con el tiempo, la tasa de calentamiento del equipo lector, entre otros.

Con protocolos rigurosos de trabajo se pueden obtener resultados de alta reproducibilidad con variaciones menores que un 5%.

El fluoruro de litio dopado con magnesio y titanio (LiF:Mg,Ti) es uno de los materiales TL más utilizados en dosimetría y más estudiados en cuanto a sus propiedades. El TLD-100 es comercialmente el de mayor uso disponible en varias formas como 'galletas' de $3.2 \times 3.2 \times 0.9 \text{ mm}^3$. Sin embargo, entender los procesos que ocurren durante cada fase de su uso ha conducido al desarrollo de modelos complejos que hasta ahora no han podido explicar del todo la dependencia de la emisión de luz con las diversas variables involucradas.

Uno de los problemas con los que se trata actualmente es el de la irradiación de los TLDs con partículas cargadas pesadas (PCPs). La irradiación con estas partículas es, a diferencia de la irradiación con radiación electromagnética, altamente no uniforme. En el caso en que las PCPs no tengan suficiente energía para atravesar por competo el material se puede definir una dosis promedio \overline{D} como:

$$\overline{D} = \frac{nE}{\rho R},\tag{1.1}$$

donde *n* es el número de partículas incidentes por unidad de área, *E* es la energía depositada por cada partícula, ρ es la densidad del material y *R* es el alcance de los iones [At 86]. Más allá del alcance *R* de las PCPs la dosis promedio es cero.

La respuesta de dosímetros termoluminiscentes expuestos a PCPs como función de la fluencia presenta un comportamiento lineal-supralineal-sublineal [Ho 01b]. En particular, el comportamiento sublineal se atribuye a efectos de daño del material y saturación de los centros luminiscentes dentro del cristal. El modelo de interacción de trazas (TIM), originalmente propuesto por Attix [At 75] y después modificado por Y. S. Horowitz y sus colaboradores [Mo 86], considera que las PCPs, al interaccionar con la materia, depositan su energía localmente a lo largo de una traza característica que depende del tipo de

radiación y del material. Dentro de las trazas la densidad de ionización es muy alta, mientras que en la región entre las trazas es prácticamente nula. Los portadores de carga liberados durante la irradiación son atrapados en defectos del cristal y, al calentarse el material, éstos pueden escapar y moverse dentro del cristal hasta caer en centros de recombinación, dando como resultado la emisión de luz.

Los modelos que utilizan simulaciones Monte Carlo, como el MCTIM [Ro 99] y el MC-ETIM [Ro 02] presentan una fuerte dependencia con la energía. En los últimos años el grupo de dosimetría de la UNAM, en colaboración con Y.S. Horowitz y su equipo, ha realizado estudios sistemáticos de la respuesta de TLD-100 a PCPs como función de la energía, fluencia y tipo de radiación. En estos trabajos se detectó la independencia de la respuesta sublineal de los dosímetros sensibilizados con la energía que aún no se ha podido explicar [Ro 00], [Ho 01b], [Ho 01c], [Br 02].

El objetivo principal de este trabajo es tratar de explicar el comportamiento sublineal de la señal termoluminiscente al variar el tipo de partícula incidente y la energía. El trabajo consistió en el estudio de la respuesta sublineal de dosímetros termoluminiscentes TLD-100 sensibilizados expuestos a PCPs de baja energía y comprendió tres etapas: experimental, análisis de los datos y comparación de resultados con simulaciones tipo Monte Carlo. Para esto se utilizaron TLD-100 sensibilizados: (irradiados con una dosis de 1000 Gy de rayos gamma de ⁶⁰Co seguido de un tratamiento térmico). Este proceso de sensibilización tiene como objetivo suprimir la respuesta supralineal de los dosímetros de manera que se tiene entonces una respuesta lineal-sublineal. Posteriormente, fueron irradiados con haces de protones de 1.1, 3.0 y 4.4 MeV, y con ¹²C de 13.0 MeV. Estas irradiaciones se llevaron a cabo en el acelerador Peletrón del IFUNAM haciendo incidir los iones sobre un blanco delgado de oro. Al chocar los iones sobre el blanco sufren dispersión de Rutherford, siendo este haz dispersado el que irradió a los dosímetros. La simulación Monte Carlo está basada en el modelo MC-ETIM [Ro 02].

3

En el capítulo 2 se presenta un breve resumen de la interacción de la radiación con materia. En el capítulo 3 se describen, de manera muy general, algunas propiedades básicas de la termoluminiscencia y de los modelos que intentan explicar la sublinealidad de la respuesta termoluminiscente a PCPs. En el capítulo 4 se describe el experimento realizado, incluyendo los tratamientos térmicos y de sensibilización, la deconvolución de las curvas de brillo y la obtención de la función de sublinealidad. En el capítulo 5 se presentan los resultados experimentales así como los obtenidos mediante la simulación Monte Carlo. En el capítulo 6 se discuten y se comparan los resultados experimentales y de la simulación Monte Carlo. También se dan las conclusiones del presente trabajo así como su importancia en el estudio de la termoluminiscencia.

Interacción de la radiación con la materia

2.1 Interacción de las partículas cargadas pesadas con la materia

Cuando las partículas cargadas pesadas, PCPs, (todas aquéllas excepto el electrón y el positrón) se atraviesan la materia, éstas se van frenando gradualmente debido al gran número de interacciones que van sufriendo al encontrarse con los electrones del medio y, menos frecuentemente con los núcleos atómicos, depositando la energía a lo largo de la trayectoria (generalmente recta) hasta que se detienen totalmente. La interacción con los electrones ocasiona excitación e ionización de los átomos del material y resulta en el frenado electrónico del ion. La interacción con los núcleos produce desplazamientos de los átomos causando daños estructurales y resulta en el frenado nuclear. Al atravesar una PCP r un medio, dependiendo de la velocidad, puede intercambiar electrones por lo que el estado de carga del ion puede cambiar.

Se define el poder de frenado $-dE_1/dx$, de un proyectil en un material dado, como la energía perdida promedio por unidad de longitud recorrida; éste es función de la energía del ion, de los números atómicos tanto del ion como del blanco y de la densidad del material. El poder de frenado total es el resultado de la suma de la pérdida de energía por las

interacciones con los electrones más la pérdida ocasionada por las interacciones con los núcleos:

$$\left(-\frac{dE_1}{dx}\right)_i = \left(-\frac{dE_1}{dx}\right)_c + \left(-\frac{dE_1}{dx}\right)_n, \qquad (2.1)$$

donde los subíndices *t*, *e* y *n* indican el frenado total, electrónico y nuclear respectivamente. En algunas situaciones es conveniente utilizar el poder de frenado másico, que se define como $(-dE_1/\rho dx)$, donde ρ es la densidad del material. En la definición del poder de frenado se supone que la trayectoria de la partícula en el medio es rectilínea (lo que ocurre casi siempre para energías altas) y que la pérdida de energía es el resultado de muchas colisiones.

El alcance lineal, R_L se define como la distancia total recorrida por la partícula en el medio y se calcula a partir del poder de frenado:

$$R_{L}(E_{0}) = \iint_{E_{0}} \left(-\frac{dE_{1}}{dx} \right)^{-1} dE_{1}, \qquad (2.2)$$

donde E_0 es la energía inicial de proyectil. El alcance proyectado R_P es el valor esperado de la máxima penetración de la partícula en la dirección original; el alcance transversal R_T es la proyección de R_L en la dirección perpendicular, figura 2.1. Por el carácter aleatorio de las interacciones de las PCPs con la materia, los proyectiles presentan una distribución de alcances lineales alrededor de un alcance lineal promedio $< R_L >$.

Como se había mencionado previamente, el frenado electrónico es el resultado de la interacción de las PCPs con los electrones orbitales de los átomos del material. Los electrones, de masa mucho menor que las PCPs, no alcanzan a desviar al proyectil de manera importante, por lo tanto la transferencia de energía en cada interacción es muy pequeña y se requiere de un gran número de colisiones para producir el frenado; éste se

asemeja entonces a una función continua (CSDA por sus siglas en inglés: continuous slowing-down approximation).



Figura 2.1 Trayectoria típica de un ion pesado en un material.

Bohr dedujo una expresión teórica del poder de frenado electrónico, a la que ahora se le llama la aproximación semiclásica [Ri 01]. La deducción supone que un ion de carga Z_1 (no relativista) incide sobre un material de número atómico Z_2 y de densidad atómica n_2 y que la velocidad del ion es mucho mayor que la velocidad orbital de los electrones por lo que se les considera libres. Supone que la energía perdida por el ion es la que se le transfiere a los electrones, pero es tan pequeña que aquel no sufre desviaciones. La interacción es coulombiana y la transferencia de momento al electrón ocurre en dirección perpendicular a la trayectoria del proyectil. La fórmula de Bohr del poder frenado electrónico es:

$$\frac{-dE_1}{dx} = \frac{2\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{v_1^2 m_e} n_2 \ln \frac{2m_e v_1^2}{\langle I \rangle}, \qquad (2.3)$$

donde *e* es la carga del electrón, m_e la masa del electrón, v_I es la velocidad del proyectil e $<l > -10Z_2$ es la energía promedio de ionización (también se supone que la mínima energía que se le puede transferir al electrón es justamente <l >). Se puede ver que el poder de frenado es mayor mientras más grande es la carga del proyectil Z_I y la densidad de material n_{21} pero es inversamente proporcional a la energía del ion incidente. Esta dependencia con la energía puede observarse en la figura 2.2 en donde se muestra al poder de frenado másico para agua y LiF. Se puede observar que el poder de frenado aumenta si se disminuye la energía del ion, que es máxima cuando está a punto de detenerse y después disminuye un poco para energías todavía menores (al máximo de la curva se le denomina pico de Bragg). Esto se explica por la captura de electrones del medio, que es mayor cuando la velocidad del proyectil es menor, perdiendo el ion su carga y disminuyendo así la interacción coulombiana con el medio. En la figura 2.3 se muestran los alcances proyectados de protones y ¹²C en agua y en LiF.

Es fácil ver, usando conservación de momento y energía, que la máxima energía E_{max} que le puede transferir una partícula de masa M y de energía E a otra en reposo de masa m durante una colisión está dada por:

$$E_{\max} = \frac{4Mm}{\left(M+m\right)^2} E.$$
 (2.4)

En el caso de un ion interaccionando con un electrón donde M > m, de la ecuación 2.4, la velocidad máxima que puede alcanzar el electrón es dos veces la del ion incidente. La energía cinética que adquieren los electrones produce ionización de los átomos y estos electrones liberados pueden a su vez también producir ionización. Cuando los electrones secundarios tienen suficiente energía como para alejarse mucho de la trayectoria del ion original, se les denomina rayos δ . Existen tratamientos cuánticos del poder de frenado que llevan a la fórmula de Bethe y correcciones relativistas para velocidades altas del proyectil. Hay en la actualidad programas de cómputo para calcular poderes de frenado como el TRIM y el SRIM2000 que toman en cuenta otros efectos como el apantallamiento de las cargas y otras correcciones [Sr 00]:

La forma de una traza se supone de forma casi cilíndrica, de radio de unos cuantos nm y longitud R_P , el alcance proyectado del ion, en donde se produce una alta densidad de ionización. La ionización y excitación del material puede provocar su posterior

8

desexcitación atómica mediante la emisión de fotones característicos y electrones (electrones Auger) o bien la energía puede quedar almacenada mediante otros mecanismos.

El frenado nuclear, resultado de colisiones del proyectil con los núcleos atómicos, aunque mucho menos frecuente, da lugar a pérdidas de energía por colisión mayores que en el frenado electrónico. Es más importante a velocidades bajas y la interacción puede describirse como una secuencia de colisiones entre pares de átomos (a velocidades bajas, dependiendo del ion, éste puede aun tener varios electrones); la energía transferida depende del parámetro de impacto, es decir, de la distancia más corta entre el ion incidente y el núcleo. El frenado nuclear da lugar a trayectorias tortuosas de los iones y los átomos del material pueden ser desplazados.

En el caso de materiales cristalinos, puede darse el caso de que, si la dirección del haz de iones es paralela a uno de los planos del cristal, el proyectil penetre entre los espacios de los átomos que lo forman. Esto causará que la dispersión sea aun más pequeña y el frenado se dé por la interacción de los electrones de las capas más externas. En consecuencia el alcance de las PCPs puede aumentar. A este fenómeno se le conoce como "channeling"o canalización.

Otro fenómeno asociado a la irradiación con PCPs es el "sputtering" o erosión iónica, que consiste en la expulsión de los átomos superficiales durante la irradiación, de manera que el material se va erosionado; es un proceso esencialmente de transferencia de momento a los átomos del material. Depende de las masas del proyectil y del blanco, de la energía del ion incidente, del ángulo de incidencia del haz con respecto de la superficie del material, de la estructura cristalina y de la temperatura.

9



(b)

Figura 2.2 Poder de frenado másico en agua y en LiF para (a) protones y (b) ¹²C (gráficas obtenidas utilizando SRIM2000).



Figura 2.3 Alcance proyectado en agua y en LiF para (a) protones y (b) ¹²C (gráficas obtenidas utilizando SRIM2000).

2.2 Interacción de electrones con la materia

La interacción de los electrones ocurre principalmente con los electrones del material y con menor frecuencia con los núcleos atómicos. En general, los electrones, por su menor masa, viajan más rápido que las PCPs, por lo que se requiere de un tratamiento relativista. Las colisiones de los electrones se pueden clasificar en tres: a) colisiones inelásticas con los electrones del material; b) colisiones elásticas con los núcleos; y c) colisiones radiativas con los núcleos.

En las colisiones inelásticas con electrones del material, siendo de la misma masa, los electrones incidentes pueden sufrir pérdidas grandes de energía durante la interacción y pueden ser desviados fuertemente de su trayectoria inicial. Las colisiones inelásticas ocurren cuando la energía de los proyectiles es mayor que la energía de excitación. Después de la colisión, los electrones son indistinguibles, por lo que arbitrariamente se toma el de mayor energía como el proyectil. Los tratamientos cuánticos relativistas se deben a Bethe y toman en cuenta efectos de los espines de los electrones. También incluyen correcciones por efectos de polarización del medio y términos relacionados con la velocidad de los electrones incidentes relativa a la de los electrones orbitales de los átomos. Al chocar los electrones incidentes con los del material, además del frenado, se produce dispersión.

Las colisiones elásticas con los núcleos también producen dispersión de los electrones y causan daño estructural al material debido a la transferencia de energía a los núcleos. La sección eficaz, o la probabilidad de dispersión, a un cierto ángulo puede aproximarse por la sección de Rutherford, con la diferencia de que la energía de los electrones puede ser relativista (en realidad también se requiere de un tratamiento cúantico). La dispersión ocasiona que las trayectorias de los electrones sean tortuosas; el ángulo promedio de dispersión es proporcional a $Z_2(Z_2+1)$.

Las colisiones radiativas con los núcleos se refieren a la aceleración que sufren los electrones debido a la interacción coulombiana. Una partícula acelerada de carga q emite

radiación electromagnética con una distribución en forma dipolar y predominantemente en la dirección del electrón incidente para energías altas. La potencia radiativa (energía por unidad de tiempo emitida en fotones) P_{rad} está dada por la expresión (en el sistema cgs):

$$-P_{rad} = \frac{2}{3} \frac{q^2 a^2}{c^3}, \qquad (2.5)$$

con la aceleración a del proyectil de magnitud:

$$a^{2} = \frac{Z_{1}^{2} Z_{2}^{2} e^{4}}{(mr^{2})^{2}}, \qquad (2.6)$$

donde r es la distancia entre el proyectil y el núcleo y m la masa del proyectil y c la velocidad de la luz. De esto se ve que las colisiones radiativas son mucho más importantes para electrones que para PCPs (una deducción simple, pero ilustrativa de la ecuación 2.5 se encuentra en el apéndice de [Pu 85]). A este tipo de radiación se le conoce como radiación de frenado o Bremsstrahlung.

Además, el poder de frenado radiativo es proporcional a la energía de los electrones incidentes y al número atómico del material al cuadrado, por lo que es más importante para electrones de alta energía incidiendo sobre materiales de Z elevada. El poder de frenado total es la suma del frenado electrónico más el frenado radiativo, lo que se puede expresar con una relación similar a la ecuación 2.1. La energía depositada por los electrones es una función discontinua de la distancia (dentro y fuera del material) como se ve en la figura 2.4. Fuera del material se deposita energía por los electrones retrodispersados y dentro del material la energía depositada va más allá del alcance de los electrones, debido a la radiación de frenado.

Si la longitud de onda de los electrones es similar al espaciamiento de los átomos en un cristal también se puede dar difracción de Bragg. A altas energías, puede suceder que los

electrones viajen más rápido que la velocidad de la luz en un medio dado, por lo que se produce una onda de choque, y si el medio es transparente se puede ver la luz emitida por este fenómeno, conocido como el efecto Cerenkov.



Figura 2.4 Forma del depósito de energía por un haz de electrones en un material como función de la profundidad. Destaca la energía depositada fuera del material (x<0) por los electrones dispersados y la depositada a mayor profundidad que el alcance de los electrones por bremsstrahlung (figura tomada de [Ri

011).

2.3 Interacción de fotones la con materia

Los fotones interaccionan con la materia mediante tres procesos principales; el efecto fotoeléctrico, el efecto Compton y la producción de pares. En todos los casos la interacción se dice que es catastrófica, va que a diferencia de las partículas cargadas, los fotones no ceden su energía de forma gradual, sino que pueden perder toda su energía o una fracción importante de ésta en las colisiones principalmente con los electrones del material. La probabilidad de que los electrones sufran una de las tres posibles interacciones depende de la energía del fotón $(h\nu)$ y del número atómico (Z_2) del material que atraviesa y generalmente se le conoce como la sección diferencial. En la figura 2.5 se muestran las regiones en las cuales predominan los tres tipos de interacción. Las curvas representan la misma probabilidad de que ocurran dos procesos.

En el efecto fotoeléctrico un fotón de energía $h\nu$ le transfiere toda su energía a un electrón orbital (el fotón es absorbido), provocando la ionización del átomo. El fotón debe de tener la suficiente energía para producir la ionización, es decir, debe tener una energía igual o mayor a la energía de ionización. Entonces, por conservación de la energía:

$$hv = E_{\rm e} + w_0,$$
 (2.7)

donde w_0 es la energía de ligadura del electrón y E_c es la energía cinética que se lleva el electrón. El análisis de la conservación de momento muestra que este proceso sólo puede ocurrir en las vecindades del núcleo (este proceso no ocurre para electrones libres), que se lleva parte del momento del fotón incidente, pero la energía cinética que adquiere es prácticamente nula. La sección del efecto fotoeléctrico es más importante para materiales de Z alta y energías bajas del fotón, como se muestra en la figura 2.5, y es más probable que la interacción ocurra para electrones fuertemente ligados (los de las capas K y L). La probabilidad de que ocurra efecto fotoeléctrico es aproximadamente proporcional a $(Z_2)^3$. El electrón liberado puede tener la suficiente energía para producir otras ionizaciones.

2.3.2 El efecto Compton

En el efecto Compton un fotón de energía hv interacciona con un electrón orbital; después de la interacción el electrón sale expulsado con parte de la energía del fotón incidente y otro fotón es emitido con el resto de la energía hv'. La reacción que ocurre durante esta colisión es relativista, por lo que se tiene que utilizar la energía relativista del electrón en su estudio. El efecto Compton ocurre principalmente con los electrones orbitales más externos del átomo, por lo que se pueden suponer libres.



Figura 2.5 Importancia relativa de los tres tipos de interacción de fotones con materia. Las curvas muestran los valores de Z y energía del fotón para los cuales la probabilidad de que ocurran dos procesos es la misma (Figura tomada de [At 86]).

Utilizando las leyes de conservación de energía y momento lineal se pueden obtener expresiones que relacionan las distintas cantidades antes y después de la colisión, por ejemplo:

$$\lambda' - \lambda = \frac{h}{m_0 c} (1 - \cos \theta), \qquad (2.8)$$

donde λ y λ ' son las longitudes de onda del fotón incidente y emitido, respectivamente y θ el ángulo entre ellos, de donde se ve que la longitud de onda del segundo fotón es mayor. (Ver la figura 2.6). También se puede encontrar una relación entre los ángulos θ y ϕ , donde ϕ es el ángulo entre la dirección del fotón incidente y la del electrón después de la colisión:

$$\cot(\theta/2) = [1 + (h\nu)/(m_{\rho}c^{2})]\tan\phi.$$
 (2.9)

Este desarrollo se puede hacer con un tratamiento más general para estudiar colisiones relativistas utilizando las variables de Mandelstam, ver por ejemplo [Ha 96]. La interacción Compton produce fotones con un espectro continuo de energías. La probabilidad de que ocurra una interacción Compton es aproximadamente casi independiente de Z_2 , pero aumenta con la densidad de electrones del medio.



Figura 2.6 Efecto Compton. Un fotón interacciona con un electrón libre. El electrón es puesto en movimiento con parte de la energía del fotón primario y un nuevo fotón es emitido con el resto de la energía.

2.3.3 Producción de pares

La producción de pares ocurre cuando un fotón de energía suficiente se convierte en un par electrón-positrón en la vecindad de un núcleo atómico, que participa en la conservación del momento total (ver figura 2.7). El fotón debe tener la suficiente energía para producir por lo menos las masas de este par de partículas, es decir 2×0.511 MeV. La energía restante se reparte entre las dos partículas, aunque por lo general el positrón adquiere una energía cinética mayor por la repulsión del núcleo. La probabilidad de este proceso aumenta con la energía del fotón primario y con el número atómico Z_2 del material absorbedor. Ambas partículas, e⁻ y e⁺, pueden producir ionización de otros átomos, hasta que pierden su energía. El positrón, cerca del final de su trayectoria se combina con un electrón para formar un positronio para finalmente aniquilarse con él produciendo dos fotones de energía 0.511 MeV que, por conservación de momento, salen en sentidos opuestos. Los fotones emitidos durante la aniquilación pueden ser absorbidos en el medio por efecto Compton o fotoeléctrico.



Figura 2.7 Producción de pares. La energía del fotón incidente debe ser por lo menos la energía requerida para producir las masas del par electrón-positrón. El proceso ocurre en la vecindad de un núcleo atómico para la conservación del momento.

2.3.4 Atenuación

En un material delgado la atenuación de un haz de fotones puede ser descrita por una exponencial decreciente. El número de fotones que atraviesan una longitud del material dx es proporcional al número N de fotones que inciden inicialmente, esto es:

$$dN/dx = -\mu N, \qquad (2.10)$$

18

donde μ es el coeficiente de atenuación lineal, que representa la probabilidad de que un fotón sea absorbido; el signo menos indica que conforme los fotones atraviesan el material, el número de fotones N disminuye. La ecuación (2.10) tiene como solución:

$$N(x) = N_0 \exp(-\mu x),$$
 (2.11)

Donde N_0 es el número de fotones iniciales, cuando x = 0. Es útil dividir el coeficiente de atenuación entre la densidad del material para definir el coeficiente másico de atenuación $\mu_m = \mu / \rho$. El coeficiente μ_m es una propiedad atómica y está relacionado con las secciones de los procesos antes mencionados, por lo que depende tanto del material, como de la energía del fotón. El coeficiente másico de atenuación puede expresarse en términos de la probabilidad, por cada átomo del absorbedor, de que un fotón sufra una interacción catastrófica. De esta manera μ_m [cm² g⁻¹], la sección total de atenuación por átomo σ_{tot} y las secciones individuales por átomo de cada proceso (efecto fotoeléctrico, Compton y producción de pares), están relacionadas de la siguiente manera:

$$\mu_{m} = \frac{M_{A}}{\sigma_{m}} \frac{N_{A}}{M} = \left(\frac{\sigma_{cf}}{\sigma_{cf}} + \frac{\sigma_{c}}{\sigma_{c}} + \frac{\sigma_{c}}{\sigma_{p}} \right) \frac{N_{A}}{M}, \quad (2.12)$$

en donde N_A es el número de Avogadro [átomos mol⁻¹], M es la masa atómica del blanco [g mol⁻¹] y σ_i es la sección de atenuación de cada proceso [cm²].



Termoluminiscencia

3.1 Introducción

Farrington Daniels y sus colegas en la Universidad de Wisconsin fueron los primeros en sugerir el uso de la termoluminiscencia (TL) como una técnica en la dosimetría de la radiación [Mc 95]. Se dieron cuenta de que el material irradiado contiene energía almacenada que podía ser liberada térmicamente; en el caso de cristales aislantes algunas de las rutas de decaimiento de las cargas liberadas térmicamente generan luz (TL). Dado que los tubos fotomultiplicadores pueden detectar niveles muy bajos de luz, el proceso TL brinda un método para conocer la historia de irradiación de un cristal. Daniels utilizó fluoruro de litio para la dosimetría de la radiación en los años 50's durante las pruebas de bombas atómicas. Utilizó este material en una forma casi idéntica al LiF actual (LiF,Mg,Ti), conocido comercialmente como TLD-100. Posteriormente, con el trabajo de Cameron y colaboradores [Ca 63], se hizo evidente que las propiedades útiles del material son el resultado de la presencia de impurezas de Mg y Ti, la empresa Harshaw Chemical Company patentó elⁱTLD-100 en 1963.

Son las impurezas y otros defectos en la estructura cristalina del dosímetro los que definen la forma de las curvas de brillo y otras propiedades dosimétricas como la estabilidad óptica y térmica de la señal TL. Hoy se sabe que en muchos materiales TL las trampas y los centros luminiscentes están espacialmente correlacionados [Ho O1a], noción crucial en el entendimiento de la respuesta dosimétrica. El entender la distribución y estructura de los

21

defectos en el material_lleva_a_comprender por qué algunos materiales poseen ciertas propiedades.

3.2 Defectos en cristales

Hay razones fisicas fundamentales que prohíben la existencia de cristales perfectos. Una imperfección es un cambio en la estructura normal y periódica de un cristal. Entre las imperfecciones se encuentran los defectos de tipo puntuales, que se pueden clasificar en cuatro: vacantes en la red, átomos intersticiales (centros H), átomos sustitucionales y otros defectos puntuales complejos. Los defectos en un cristal deben encontrarse en un número tal que dejen eléctricamente neutro al cristal [De 62].

Los halogenuros alcalinos, como la sal común NaCl y el fluoruro de litio LiF, son cristales de moléculas formadas de un ion del Grupo I de la tabla periódica (metales alcalinos) y otro del Grupo VII (los halógenos). Los iones se encuentran unidos para formar la molécula a través de la fuerza coulombiana entre sus cargas, lo que se conoce como enlace iónico. En un cristal de LiF cada ion de Li⁺, colocado en el centro de un cubo, está rodeado por seis iones de F⁻ y cada ion de F⁻ a su vez está rodeado de iones Li⁺ de la misma manera, como se ve en la figura 3.1.



1.5.544

Figura 3.1 Estructura del cristal de LiF perfecto

En los halogenuros predominan los defectos de Schottky. Éstos están formados por una vacante positiva y una negativa. También existen los de Frenkel, formados por una vacante positiva y un ion positivo colocado en un sitio intersticial, y rara vez formados de una vacante y un ion intersticial negativo, figura 3.2(a) y 3.2(b) [De 62].

¿Cómo afecta una vacante de un ion Li⁺ a los iones vecinos en un cristal LiF? La ausencia del ion positivo se comporta como una carga negativa que empuja a los iones negativos hacia una posición que se aleja de la vacante. La energía de los electrones 3s de los iones F⁻ vecinos a la vacante, e incluso la de los iones que están a dos distancias interatómicas, aumentará ligeramente con respecto de la de los electrones 3s de un cristal de LiF perfecto. Como resultado, estos electrones no estarán en la banda de valencia sino que un poco por finarriba, dentro de la banda prohibida.

Además de los defectos del cristal, pueden existir impurezas. Una impureza es un átomo o una molécula distinta al material base. Las impurezas pueden tener electrones de más o de menos, afectando energéticamente a los electrones de los iones vecinos, creando niveles de energía muy cercanos a los de valencia o conducción dentro de la banda prohibida. Este fenómeno es la esencia de la conducción en los materiales semiconductores.

3.3 El material LiF:Mg,Ti (TLD-100)

น่าว วิจ

El TLD-100 (LiF:Mg,Ti con 92.5 % de ⁷Li y 6.5% de ⁶Li), disponible comercialmente en varias formas como 'galletas' $(3.175 \times 3.175 \times 0.89 \text{ mm}^3)$ y 'microcubos' (de 1 mm de lado), es el dosímetro TL comercialmente más usado. Las concentraciones de Mg y Ti son de aproximadamente 300 y 15 partes por millón respectivamente. Permite, bajo condiciones controladas, tener una reproducibilidad del 5% y puede medir dosis tan bajas como 10 μ Gy y tan altas como 10 Gy. El LiF tiene una densidad de 2.635 g cm⁻¹ y número atómico efectivo de 8.2, similar al del tejido humano.



+

TESIS CON FALLA DE ORIGEN

Figura 3.2 Algunos tipos de defectos en cristales: (a) Defecto de Schottky formado por la ausencia de una vacante positiva y negativa. (b) Defecto de Frenkel formado por una vacante positiva y un ion positivo en un lugar intersticial. (c) Centro F constituido por un electrón atrapado en una vacante de un ion negativo.

(c)

+

En el LiF:Mg,Ti las impurezas de magnesio entran como iones Mg^{2+} en el lugar de un ion Li⁺, la neutralidad de la carga se preserva con la ausencia de otros iones Li⁺. Esto da como resultado pares de vacante-impureza (Mg-Li_{vac}) dipolares, que a su vez se agrupan para formar trímeros (tres dipolos juntos). El horneado de los cristales favorece la formación de los trímeros. El titanio, en iones Ti³⁺ o Ti⁴⁺, también sustituye a iones Li⁺ frecuentemente unido a iones de oxígeno e hidroxilos, algunos de los cuales pueden resultar en centros competitivos (CC) que pueden atrapar electrones sin la producción de luz, como se explica más adelante. Hay evidencias de que durante cada fase de su uso (tratamiento térmico, irradiación y lectura) ocurren procesos de agrupamiento y creación de defectos, lo que influye sobre el número de trampas y centros de recombinación. La sensibilidad del TLD-100 puede variar de lote a lote y parecen tener 'memoria' de irradiaciones y/o tratamientos

térmicos anteriores. Utilizando el pico más importante, el pico 5 (también llamado pico dosimétrico), los TLD-100 han sido empleados en diversas aplicaciones dosimétricas en medicina, dosimetría personal, ambiental, reactores nucleares, aviación, etc. [Mc 95].

3.4 El proceso de la termoluminiscencia

La TL es un proceso que pertenece a la familia de los fenómenos térmicamente estimulados. Estos constan de dos etapas: (a) la perturbación del sistema a un estado metaestable y (b) la relajación térmicamente estimulada de regreso al estado de equilibrio. En el caso de la TL estas etapas corresponden a:

- (a) La absorción de la energía de la radiación ionizante o luz ultravioleta (UV)
- (b) La relajación de los portadores de carga de estados excitados metaestables a los estados base. La emisión de luz es el resultado de este proceso.

La absorción de la energía de la radiación ionizante en el material depende de la energía que ésta porte. La energía absorbida ocasiona inestabilidad de los portadores de carga y de los defectos en el material (presentes desde antes de la irradiación o causados por la misma).

El almacenamiento de la energía ocurre mediante la producción de pares electrón-agujero (e-h) y la creación de excitones que, como pueden migrar dentro del cristal, para que la energía se estabilice, se requiere de la presencia de defectos en donde puedan quedar atrapados. El resultado de este proceso es la formación de defectos de Schottky y de Frenkel *con* electrones y agujeros atrapados. Los electrones, liberados por la irradiación, pueden ser atrapados en una vacante de ion negativo (en el caso de un cristal de LiF, en un sitio donde está ausente un ion de F⁻). A esto se le conoce como un centro F (que viene de la palabra *farbe*, que en alemán significa color), figura 3.2(c). Físicamente se puede imaginar que el electrón queda ligado a alguno de los iones metálicos (como el Li⁺) que rodean a la vacante, pero que está constantemente cambiando de posición. El excitón consiste de un electrón, que después de haber absorbido un fotón, éste no se independiza de la banda de valencia de la que ha salido, sino que sigue ligado a ella a través del agujero que ha dejado, el cual lo atrae con una fuerza coulombiana. En el excitón, el electrón no llega a la banda de conducción sino a un nivel muy cercano, pero aún en la banda prohibida. La energía de amarre del excitón (la energía necesaria para llevarlo a la banda de conducción) es del orden de 1 eV en halogenuros alcalinos. Hay evidencia teórica y experimental de que los excitones pueden moverse a través de la red cristalina cuando un ion halógeno excitado transfiere su energía a uno vecino, éste a su vez a otro, etc. Esto puede producir más centros F e incluso el movimiento de iones en el cristal, produciendo centros H. Es importante mencionar que la localización de los portadores de carga en defectos e impurezas es un proceso no radiativo.

Durante la relajación térmicamente estimulada, mediante el calentamiento de la muestra, se produce un reacomodo de las cargas y átomos intersticiales en el cristal. Al calentarse el material, los electrones y agujeros pasan a las bandas de conducción y valencia, respectivamente, para después ser reatrapados en su misma u otra trampa. La emisión TL ocurre de la recombinación de electrones (que se encontraban en centros de atrapamiento, TC) con agujeros atrapados (o centros luminiscentes, LC) y de átomos intersticiales (centros H) con vacantes (centros F). En la figura 3.3 se muestra esquemáticamente este proceso. También puede ocurrir la liberación de electrones y agujeros sin pasar por las bandas, si es que existe una asociación espacial entre las trampas y los centros de recombinación, pasando por estados que no están en las bandas en una forma de tunelaje.

Durante el proceso de recombinación de un centro H con un centro F, se obtiene el arreglo cristalino perfecto y ocurre la desexcitación de un electrón mediante la emisión de un fotón contribuyendo con la señal TL. Sin embargo, la recombinación puede resultar también en procesos no radiativos (como en la emisión de la energía en fonones, cuantos de energía vibracional) [De 62].



Figura 3.3 Representación simplificada del proceso de termoluminiscencia. (a) Absorción y almacenamiento de la energía de la radiación ionizante por el atrapamiento de electrones y agujeros. (b) Liberación de los electrones por el calentamiento y recombinación con la producción de luz.

Conforme la temperatura aumenta, más cargas o centros H se liberan, y si aumenta aún más, la intensidad de la luz emitida disminuye conforme las trampas se van vaciando. Si se grafica la intensidad de la luminiscencia como función de la temperatura, se obtienen las curvas de brillo. Cada pico de la curva de brillo corresponde a la liberación de electrones, agujeros o centros H de distintos tipos de defectos caracterizados por una energía E a la que se le asocia una profundidad de trampa.

Son las impurezas y los defectos los que determinan las trampas y cómo ocurren los procesos de recombinación radiativa de las cargas liberadas durante la irradiación. Es por eso que la TL es ultrasensible a las variaciones, por diminutas que sean, a los tipos de defectos, su ubicación y concentración (en ppm). Mientras que la presencia de defectos e impurezas permite medir niveles de radiación tan bajos como la de fondo, las variaciones de éstos pueden producir diferencias considerables en la señal TL.



Los materiales TL pueden hallarse en varios estados posibles por la complejidad del equilibrio al que pueden llegar debido a los defectos. Una descripción matemática involucraría múltiples ecuaciones diferenciales parciales, no lineales y acopladas. Una perturbación en una región del sistema afecta el comportamiento de todo por lo que los fenómenos alrededor de la TL resultan ser en buena parte impredecibles.

Los modelos de trampas y centros de recombinación aislados son inapropiados para la descripción de los procesos TL debido a las altas concentraciones de impurezas. Aunque los factores que influyen en los procesos TL introducen grandes dificultades en la interpretación y predicción de los roles de los defectos en la señal TL, éstos pueden, de cualquier manera, garantizar un mecanismo TL eficiente y constante. Por lo tanto, la dosimetría termoluminiscente (DTL) desarrollada empíricamente puede usarse aunque se tenga un modesto entendimiento de la física detrás de estos complejos sistemas.

3.5 Modelos para describir la termoluminiscencia

En 1945 Randall y Wilkins [Ra 45] propusieron un modelo para describir la intensidad TL, I(T), de un material calentado como función de la temperatura (T), es decir, la forma de la curva de brillo. El modelo supone la existencia de un sólo tipo de trampa y uno de centro de recombinación, lo que se conoce como descripción cinética a primer orden del proceso TL. La probabilidad P(T)de que la energía absorbida por el electrón sea suficiente para liberarlo de la trampa de profundidad E está dada por:

$$p(T) = s(T) \exp(-E/kT),$$
 (3.1)

donde s(T) es un parámetro que también depende de la frecuencia vibracional del cristal y está relacionado con el cambio de la entropía asociada a la liberación de las cargas. La emisión de luz es proporcional a la tasa de electrones liberados. Sea n(t) el número de electrones atrapados al tiempo t. Entonces, en el modelo:

$$dn/dt = -ns \exp(-E/kT).$$
(3.2)

Esto es, la tasa de cambio del número de electrones atrapados en las trampas de profundidad E, es proporcional al número de electrones atrapados multiplicado por la probabilidad de que puedan escapar cuando la temperatura del sistema es T (suponiendo s constante). El signo menos indica que el número de electrones atrapados n va disminuyendo con el tiempo t. La intensidad de luz I(T) emitida durante el proceso de calentamiento, como función de la temperatura es proporcional al número de electrones que van escapando de las trampas, por lo que es proporcional a dn/dt. Entonces,

$$I(T) = C (dn/dt) = -Cns \exp(-E/kT), \qquad (3.3)$$

donde C es la constante de proporcionalidad. Sea $T = \beta t + T_0$, donde β es la tasa de calentamiento y T_0 es la temperatura desde la que se empieza a calentar la muestra hasta la temperatura T. Integrando y tomando logaritmo natural de ambos lados se obtiene:

$$I(T) = Cn_0 s \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \exp\left[\frac{-s}{\beta} \int_0^s \exp\left(\frac{-E}{k\theta}\right) d\theta\right], \quad (3.4)$$

donde n_o es el número de electrones atrapados antes del calentamiento. Se puede encontrar una relación para la temperatura a la cual ocurre el máximo T_m de la curva de brillo dada por la ecuación 3.2, derivando con respecto a T e igualando a cero:

$$\frac{\beta E}{kT_m^2} = s \exp(-E/kT_m). \tag{3.5}$$

En la figura 3.4 se muestra un ejemplo de la intensidad I(T), obtenida con la ecuación 3.4, en donde se puede observar la forma asimétrica de la curva.
Este modelo supone que la probabilidad de que ocurra reatrapamiento de los electrones liberados por el calentamiento es cero, es decir, todos los electrones liberados sufren recombinación con la subsecuente emisión de luz. Además, supone que la temperatura de los picos es independiente del número de electrones que ocupan la trampa, característica que parecen cumplir la mayoría de los materiales dosimétricos.



Figura 3.4 Intensidad de la luz TL como función de la temperatura obtenida mediante la ecuación 3.4.

Una modificación a este modelo la introdujeron Garlick y Gibson [Ga 48] considerando que los electrones y agujeros también podían ser reatrapados, lo que llevó a lo que se conoce como una descripción de segundo orden. Dussel y Bube presentan un modelo más realista descrito brevemente por SWS McKeever en su libro [Mc 95].

El modelo consiste en suponer que existen trampas activas (AT), trampas someras (ST), trampas profundas de electrones (DET) y trampas profundas de agujeros (DHT) catalogadas por sus siglas en inglés. El sistema está modelado por dos ecuaciones diferenciales:

$$dn/dt = -ns \exp(-E/kT) + n_c(N-n)A$$
(3.6)

$$dn_c/dt = -dn/dt + n_c \tau^{-1}, \qquad (3.7)$$

donde n_c es la densidad de electrones libres, N el número de trampas disponibles, A una constante relacionada con la probabilidad de atrapamiento, y τ la vida media de recombinación. Este sistema de ecuaciones no-lineales y acopladas no se puede resolver analíticamente. Si se hace la aproximación $n_c \tau^{-1} >> dn_c/dt$, que es la aproximación de cuasi-equilibrio y recordando que I(T) = C (dn/dt), ecuación 3.3, se tiene que:

$$I(T) = \frac{-nsC\exp(-E/kT)}{1 - A\tau(N-n)} \quad . \tag{3.8}$$

Integrando la expresión anterior se llega a una ecuación trascendental para *n*. Si se hace la aproximación de cinética de primer orden: $1 >> A\tau(N - n)$, se obtiene la ecuación (3.4) que es la de Randall y Wilkins. Para más detalles de la formulación teórica se recomienda al las referencias antes citadas.

La importancia de entender la forma de las curvas de brillo y los parámetros que las gobiernan radica en la interpretación de las alteraciones que sufre como resultado de cambios en la dosis absorbida, tipo de radiación, energía de la radiación, tasa de calentamiento y de los tratamientos térmicos que se le dan al material anteriores a la irradiación. La forma de las curvas de brillo parece ser independientes de la tasa de dosis a la que se irradió el dosímetro; sin embargo existen trabajos recientes que han explorado esta posibilidad [Ch 00].

El análisis de las curvas de brillo presenta, sin embargo, varias dificultades. Entre ellas está el que las curvas de brillo están formadas generalmente de varios picos y que por lo regular, dichos picos se traslapan. La manera más usada en estos días para el análisis de curvas de brillo consiste entonces en la separación de la curva en los picos individuales que la componen; la forma de los picos dada por la ecuación 3.4. A este proceso se lo conoce como deconvolución. Es así como es posible estudiar el área de los picos, su altura y ancho, ya sea para de ahí extraer los parámetros de las ecuaciones o para comparar su evolución con la dosis, fluencia y otras variables con otros experimentos. Actualmente existen programas que realizan este proceso (CGCD, por sus siglas en inglés: Computarised Glow Curve Deconvolution) basados en la aproximación de Podgorsak, [Mo 83], desarrollada alrededor de la cinética de primer orden. Utilizando mediciones de absorción óptica, distintas tasas de calentamiento y diferentes tratamientos de sensibilización se le han podido asociar a los distintos picos que se observan en las curvas de brillo, los distintos procesos posibles de recombinación; en LiF por ejemplo, el pico dosimétrico principal, el pico 5, ha sido identificado con un trímero de Mg-Livue [Ho 03].

3.6 La función de supralinealidad

Como ya se mencionó previamente, la definición de dosis para irradiaciones con PCPs no es rigurosamente correcta porque el depósito de energía es altamente inhomogéneo, con regiones entre las trazas donde no ocurren ionizaciones. Es por esta razón que la respuesta de dosímetros TL a PCPs se expresa normalmente como función del número de partículas incidentes por unidad de área (fluencia) y no en términos de dosis. Dado que la respuesta TL a PCPs no es siempre lineal con la fluencia, la función de supralinealidad, f(n), donde nes la fluencia de las partículas incidentes en cm⁻², es un parámetro útil que describe la respuesta del material con respecto a un comportamiento lineal. Está definida como:

$$f(n) = \frac{F(n)/n}{F(n_0)/n_0},$$
 (3.9)

donde F(n) es la intensidad de la señal TL a una fluencia n y n_0 es la fluencia cuando la señal es lineal. Cuando f(n) es igual a la unidad, la respuesta TL es lineal con la fluencia, cuando es mayor es supralineal y cuando está por debajo de 1 la respuesta se dice que es sublineal. En la figura 3.5(a) se muestra un ejemplo de una curva típica de la señal TL

como función de la fluencia y en (b) su correspondiente función de supralinealidad. Las líneas punteadas representan linealidad. En este ejemplo, la linealidad ocurre para fluencias de hasta 10^9 cm^{-2} ; la supralinealidad alcanza su máximo en $3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. A partir de este momento los fenómenos de supralinealidad y saturación ocurren simultáneamente. La sublinealidad es dominante a partir de $2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.

3.7 Irradiación con partículas cargadas pesadas

El interés sobre este tema renació con el uso de PCPs en aplicaciones médicas y por la necesidad de tener métodos confiables y prácticos para determinar dosis absorbida en otras áreas como en la dosimetría espacial. Sin embargo, la respuesta TL de materiales dosimétricos a partículas cargadas pesadas (PCPs) es un fenómeno muy complejo [Ho 81]. Se ha visto que la respuesta de TLD-100 presenta una dependencia lineal-supralineal-sublineal con la fluencia. Pero también existe el problema de que al ser irradiados con PCPs la energía queda depositada a lo largo de las trazas de los iones incidentes, y aún dentro de las trazas, el depósito es altamente no uniforme, debido a que los electrones secundarios depositan a su vez energía en sus trayectorias irregulares. Para PCPs con energías de unos cuantos MeV por nucleón, el depósito de energía en LiF ocurre dentro de alrededor de 1 μ m del centro de la traza en la dirección radial. Además, el espectro de los electrones secundarios secundarios en la traza es muy complejo [Av 99]. De acuerdo con la teoría de estructura de trazas (TST), la respuesta TL resulta principalmente de la contribución de electrones secundarios [Ho 82].

Los electrones secundarios son los responsables del depósito microscópico de la energía, por lo que es necesario seguir de cerca sus interacciones a lo largo del cristal mientras pierden su energía. Para velocidades de iones incidentes $v > v_0 Z^{2/3}$ (donde $v_0 = c / 137$ y Z es el número atómico del material) el poder de frenado electrónico está dado por la fórmula de Bethe-Bloch [Tu 95].

33



Figura 3.5. Ejemplos hipotéticos de (a) señal TL; (b) función de supralinealidad, f(n), como función de la fluencia *n*. Las líneas punteadas representan linealidad.

Cuando un dosímetro se irradia con radiación electromagnética, la energía es depositada de manera relativamente uniforme en todo el volumen del material por los electrones secundarios. En contraste, en el caso de irradiaciones con PCPs, los electrones secundarios viajan en cualquier dirección desde el punto de creación en la trayectoria de la PCP, lo que da como resultado una distribución de ionización alrededor de la trayectoria de la PCP altamente inhomogénea, en forma (aproximadamente) de cono, y por lo tanto de los centros activados. Durante la absorción de la radiación los portadores de carga no viajan fuera de las trazas; así se consideran regiones con una alta densidad de defectos creados y zonas con baja o nula densidad de defectos en las regiones intertrazas.

3.8 El modelo de interacción de trazas

Se han realizado varios estudios, tanto teóricos como experimentales, para entender la supralinealidad de la respuesta TL cuando los TLDs son expuestos a PCPs. Los modelos aún no han podido predecir cuantitativamente y con exactitud el comportamiento lineal/supralineal que se ha observado. El modelo de interacción de trazas (TIM, por sus siglas en inglés), originalmente propuesto por Attix en 1975 [At 75], y posteriormente por Horowitz y colaboradores [Mo 86], fue desarrollado para explicar la supralinealidad de la señal TL cuando los TLDs son irradiados con PCPs. Medidas de absorción óptica, asociada con el llenado de trampas durante la irradiación del dosímetro (la cual aumenta linealmente con la dosis) muestran que la respuesta supralineal no puede explicarse por la competencia entre trampas durante la irradiación, sino durante el calentamiento del material [Ho 01c]. El TIM es un modelo que da una descripción puramente geométrica del problema y que intenta explicar la supralinealidad durante esta etapa del uso de los dosímetros.

En términos muy simples, el TIM identifica a las trazas como regiones cilíndricas donde ocurre una alta densidad de ionización. A estos cilindros o trazas se les asocia un radio efectivo r_{ef} , que corresponde a la región en la cual los electrones secundarios han depositado su energía en el material. El modelo supone la existencia de centros de atrapamiento (TCs), centros luminiscentes (LCs) y centros competitivos (CCs) distribuidos

35

FALTA

PAGINA



Durante el calentamiento del cristal, los portadores de carga (por simplicidad pensemos sólo en los electrones) llegan a la banda de conducción, migran y pueden entonces caer en centros de recombinación (centros luminiscentes activados) dentro de la misma traza, produciéndose termoluminiscencia. Los electrones liberados de sus trampas durante el calentamiento pueden escapar de las trazas en donde se originaron; la probabilidad de llegar a trazas vecinas está relacionada con el camino libre medio λ_e , proporcional a $e^{-\lambda_r}$, donde *r* es la distancia radial, ya que pueden ser atrapados por los CCs en las regiones intertrazas sin producirse emisión de luz [Mo 86]. Para irradiaciones a fluencias bajas la distancia entre las trazas es grande, por lo que la recombinación de los electrones se da mayoritariamente dentro de las trazas. Por lo tanto, la luz producida es directamente proporcional a la fluencia *n*. Algunos autores [Ho 01a] consideran que los agujeros pueden migrar de las trazas y pueden ser reatrapados en sitios de recombinación, aumentando el radio efectivo de recombinación de las trazas.

Conforme la fluencia aumenta, la distancia intertrazas disminuye, aumentando la probabilidad de que los electrones puedan llegar a trazas vecinas sin ser capturados por CCs. La contribución de la luz de los electrones que se recombinaron en trazas vecinas es una contribución extra a la que se tiene por la recombinación de electrones dentro de sus mismas trazas. En este caso, la eficiencia de emisión de luz aumenta, lo que produce supralinealidad. El camino libre medio de los electrones λ_e está relacionado con la temperatura, de manera que a mayor temperatura la probabilidad de que los electrones viajen a distancias mayores aumenta [Ho 96]. Esto se refleja en que la supralinealidad de cada pico de las curvas de brillo es diferente: en comparación con los picos de bajas temperaturas, los picos de altas temperaturas presentan una mayor supralinealidad y ésta empieza a ocurrir a fluencias menores.

Se ha observado que el inicio de la supralinealidad depende de la naturaleza vectorial del campo de irradiación. En un campo de irradiación paralelo, el inicio ocurre para fluencias hasta 5 veces más bajas en comparación con una irradiación isotrópica (por ejemplo, de una fuente radiactiva). Este resultado, está de acuerdo con las predicciones del modelo [Ho 96].

Por otro lado, la saturación en la respuesta TL se explica geométricamente cuando a fluencias muy altas ocurre superposición de las trazas. A bajas fluencias la superposición de las trazas es poco significativa, pero a fluencias muy altas las superposición es evidente, de manera que al aumentar la fluencia la emisión de señal TL ya no aumenta proporcionalmente debido a efectos de daño y saturación. El modelo supone que la luz producida por el dosímetro es proporcional al área efectiva presentada por las trazas, supuestas también cilíndricas de radio r_s . A bajas fluencias el traslape de trazas es despreciable y el área efectiva es proporcional a la fluencia. Conforme la fluencia aumenta, el traslape de trazas es cada vez más importante y el área efectiva es cada vez más pequeña con respecto al área que debería presentar la fluencia n multiplicada por el área de una sola traza.

3.8.1 Simulación Monte Carlo del TIM

El MCTIM es un modelo que utiliza simulaciones Monte Carlo basado en las ideas del TIM, [Ro 99], [Ro 00], [Ho 01b]. El modelo calcula la función de supralinealidad en tres partes:

$$f(n) = 1 + f_{sub}(n) + k f^{sup}(n), \qquad (3.10)$$

donde el 1 proviene de las contribuciones dentro de las trazas (respuesta lineal), $f_{sub}(n)$ describe los efectos de sublinealidad (daño y saturación), $f^{sup}(n)$ representa la contribución supralineal y k es un parámetro, denominado parámetro de escape de la traza, relacionado con la fracción de electrones que logran migrar a trazas vecinas y aquéllos que se recombinan en la misma traza. Dado que las trazas son cilíndricas en toda su extensión, el problema se reduce a uno de dos dimensiones, en donde las trazas son caracterizadas por círculos de radios efectivos. En la simulación se consideran 4 parámetros libres: los radios r_e para la parte supralineal y r_s para la parte sublineal, λ_e y k los cuales se ajustan durante los cálculos. En el caso de la sublinealidad, la respuesta TL también se considera proporcional al área presentada por las trazas, cuyas posiciones son generadas aleatoriamente. Para fluencias bajas la respuesta TL es proporcional al área presentada por los círculos de las trazas. A altas fluencias el área queda modificada de manera importante por el traslape de estos círculos. $f_{sub}(n)$ se calcula haciendo el cociente del área efectiva a una fluencia dada y del área total presentada por las *n* trazas no traslapantes.

3.9 El modelo de interacción de trazas extendido

El modelo de interacción de trazas extendido (ETIM) hace esencialmente las mismas suposiciones que el TIM para explicar la respuesta de materiales TL a PCPs como función de la fluencia, con la diferencia de que las trazas ya no se suponen cilíndricas sino que ahora tienen una estructura. En este modelo se toma en cuenta la estructura de la traza a través de sus distribuciones radiales de dosis (DRD) que se calculan utilizando técnicas Monte Carlo, generando y siguiendo a los electrones secundarios producidos dentro de la traza en la etapa de irradiación del cristal [Av 99].

En la figura 3.7 se da un ejemplo de la distribución radial de dosis obtenida mediante estas técnicas. Es interesante observar en esta gráfica la caída tan abrupta (de varios órdenes de magnitud) de la dosis como función de la distancia radial. Adicionalmente, también se puede hacer notar las dosis tan grandes que se depositan muy cerca del eje de la traza. En el ejemplo mostrado en la figura 3.7 se tiene una dosis mayor que 10⁷ Gy alrededor de un radio de 1 Å, y a pesar de la caída tan abrupta de la dosis a 10 Å, ésta todavía tiene valores mayores que 10⁶ Gy. Puede pensarse que esta cantidad de energía depositada tan grande, concentrada en distancias radiales pequeñas, podría estar causando (además de saturación en la señal TL en esa región) daño físico al cristal.



Figura 3.7. Ejemplo de una distribución radial de dosis de una traza de protones en LiF obtenida usando técnicas Monte Carlo.

En el ETIM se propone realizar los cálculos en términos de la densidad de centros luminiscentes ocupados (activados), la cual a su vez depende de la dosis depositada en el material, es decir, de la distribución presentada en la figura 3.7 para cada traza.

A partir de medidas de absorción óptica [Ho 01c] se ha propuesto la siguiente relación para la probabilidad de ocupación de LCs, TCs y CCs como función de la dosis D:

$$n_i = N_i [1 - \exp(-\beta_i D)],$$
 (3.11)

donde n_i es la densidad de centros ocupados, N_i es la densidad total de ocupación de cada tipo de centro y β_i es la constante de atrapamiento para cada tipo de centro. De manera semi-empírica se llega a la conclusión de que la densidad de ocupación de los LCs es la que determina la respuesta del pico 5 a PCPs y se encuentra que $\beta_{LC} = 3.1 \times 10^{-3} \text{ Gy}^{-1}$ [Ho 01c], [Ro 02]. En la figura 3.8 se muestra la curva de la probabilidad de ocupación como función de la distancia radial del centro de la traza, calculada con la ecuación 3.11, correspondiente al ejemplo de la DRD de la figura 3.7.





3.9.1 Simulación Monte Carlo del ETIM

También se han desarrollado simulaciones Monte Carlo del modelo ETIM (denominado MC-ETIM), el cual calcula la probabilidad de ocupación de los LCs a partir de las DRDs. Se aplican las mismas suposiciones que en el MCTIM con la diferencia de que los radios r_e y r_s dejan de ser parámetros libres, pues ahora las trazas tienen una estructura bien definida a partir de sus DRDs y de la probabilidad de ocupación de los LCs. El número total de parámetros se reduce a dos, el camino libre medio de los electrones (λ) y el parámetro de

escape de la traza (k). Estos dos últimos parámetros están relacionados con los cálculos de supralinealidad. Sin embargo, en este trabajo los dosímetros recibieron un tratamiento de sensibilización (descrito en la siguiente sección), que suprime el comportamiento supralineal. Bajo estas circunstancias, se espera que la función de supralinealidad, f(n), sólo tenga un comportamiento lineal-sublineal por lo que la ecuación 3.10 se reduce a la siguiente expresión:

$$f(n) = 1 + f_{sub}(n).$$
(3.12)

Siguiendo el mismo argumento descrito previamente para el cálculo de $f_{sub}(n)$ en el que la señal TL era proporcional al área efectiva presentada por las trazas dado que se considera que las trazas tienen estructura a través de sus probabilidades de ocupación, los cálculos se realizan suponiendo que la respuesta TL es proporcional a la integral de la probabilidad de ocupación de los LCs como función de la fluencia. A fluencias bajas, la integral de dichas distribuciones es proporcional a la fluencia, debido a que prácticamente no hay traslape de trazas. A altas fluencias, el traslape de las trazas es muy importante, por lo que la integral efectiva de la probabilidad de ocupación de los LCs puede verse drásticamente reducida comparada con el área que dichas distribuciones presentarían si no hubiera traslape de trazas. Es importante mencionar que el cálculo de la ecuación 3.12 no requiere del uso de ningún parámetro libre.

En los modelos, la distribución espacial de los electrones secundarios producidos durante la irradiación del dosímetro depende fuertemente del tipo de PCP y de su energía, por lo que el radio de las trazas debería entonces depender de la velocidad del ion incidente; a mayor energía mayor el radio de la trazas. Una consecuencia de esta dependencia debería predecir la saturación de la respuesta TL a fluencias menores para iones incidentes más veloces. Los modelos MCTIM y MC-ETIM predicen una fuerte dependencia de la saturación con la energía de las PCPs [Ro 00], [Ro 02].

42

3.10 Sensibilización de TLD-100

La sensibilidad de un dosímetro termoluminiscente (TLD) está formalmente definida como la intensidad de la señal TL por unidad de dosis absorbida. Definir la sensibilidad en una manera tan absoluta como ésta es difícil, ya que la señal TL medida depende de las condiciones de operación del equipo lector que se esté usando, de la tasa de calentamiento y del método que se use para extraer esta información de la curva de brillo (alturas, áreas debajo de los picos, etc.). Por esto se define la sensibilidad de un TLD como la señal obtenida, en iguales condiciones, relativa a la de un TLD de referencia (generalmente TLD-100).

La sensibilización es la habilidad de aumentar la sensibilidad de un TLD. El proceso de sensibilización para TLD-100 consiste en una irradiación a 1000 Gy con radiación γ de ⁶⁰Co seguido de un horneado a 300°C por una hora. La elección de 1000 Gy proviene de la observación de que no se ve ningún aumento en la sensibilidad del dosímetro para dosis de sensibilización mayores [Ho 01a]. El aumento en la sensibilidad es explicado por la ocupación parcial de los CCs y por la activación de LCs. El horneado a 300°C por una hora vacía los TCs (por lo menos hasta esta temperatura) dejando ocupados a los CCs debido a su activación térmica mayor. Por lo tanto, la inefficiencia de los mecanismos competitivos da como resultado una respuesta lineal. Aunque la sensibilización llena tanto a los CCs como a los LCs, medidas de AO indican que los CCs aun no están totalmente ocupados, lo que implica que la ausencia de un aumento en la sensibilidad para dosis mayores que 1000 Gy es debida a la saturación de los LCs [Is 02]. Para un TLD-100 sensibilizado, la sensibilidad es definida como la señal TL relativa a una dosis dada a la señal que se obtiene de uno que no lo esté.

En el caso de los TLDs sensibilizados la supralinealidad queda suprimida, observándose una región lineal para fluencias bajas, seguida de una sublineal para fluencias altas. El llenado de los CCs permite que, para fluencias bajas, los electrones puedan migrar durante el calentamiento del dosímetro a trazas vecinas sin ser atrapados, por lo que la señal TL resulta ser lineal con la fluencia en todos los casos, antes de que se dé la superposición de las trazas. Cuando esto último ocurre, el proceso TL deja de ser lineal y pasa a ser sublineal conforme aumenta la fluencia. En la figura 3.9 se muestra una curva de brillo leída de temperatura ambiente hasta 265°C de un TLD-100 sensibilizado, con una dosis de 1000 Gy de gammas de 60 Co y horneado por 1 hora a 300°C, e irradiado con protones de 3 MeV a una fluencia de 6×10⁸ cm⁻². Se puede ver el pico 5 sombreado en gris. En el Apéndice II pueden observarse curvas de brillo de TLD-100, con y sin tratamientos de sensibilizado, irradiados con partículas α .



Figura 3.9. Curva de brillo típica de un TLD-100 sensibilizado e irradiado con protones a una fluencia de 6×10^8 cm⁻². El pico 5 es el pico dosimétrico más importante. (Figura realizada con un programa tomado de [Me 02]).

En los siguientes capítulos se presentan la metodología utilizada y los resultados experimentales de la respuesta de TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones y carbonos, y su comparación con predicciones obtenidas con el modelo MC-ETIM.

4

4.1 Proceso de sensibilización

Los dosímetros utilizados fueron TLD-100 de $3.175 \times 3.175 \times 0.89 \text{ mm}^3$, 22 para cada experimento. El proceso de sensibilización de los dosímetros consistió en tres etapas, entre cada etapa había un lapso de tiempo de 24 horas:

- (a) Tratamiento térmico completo: horneado en aire a 400°C por una hora, con enfriado rápido a temperatura ambiente y, 24 horas después, un segundo horneado en aire a 100°C por dos horas con enfriado rápido a temperatura ambiente. Todos los horneados fueron realizados en un horno programable F47900 Furnace Barnstead/Thermolyne, el cual se programa a la temperatura nominal correspondiente y se deja calentar por unos 20 minutos antes de introducir los dosímetros para permitir una estabilización de la temperatura.
- (b) Irradiación de los dosímetros a 1000 Gy con gammas de ⁶⁰Co en el GammaCell del Instituto de Ciencias Nucleares, UNAM. La tasa de dosis era aproximadamente 0.91 Gy min¹ el 11 de febrero de 2002. Los dosímetros fueron colocados todos juntos dentro de un contenedor de lucita rectangular de 5 mm de espesor para asegurar que hubiera equilibrio de partícula cargada [At 86].

(c) Horneado en aire a 300°C por una hora con enfriado rápido a temperatura ambiente.

45

4.2 La irradiación

La irradiación de los dosímetros TLD-100 sensibilizados se llevó acabo en el acelerador de partículas Peletrón del Instituto de Física de la UNAM. El acelerador es de tipo tándem, electrostático y produce haces enfocados de áreas transversales menores que 0.3 cm² con corrientes que van desde nA hasta μ A. Se utilizaron haces de protones de 1.1 MeV, 3.0 MeV, 4.4 MeV y un haz de ¹²C de 13 MeV nominales.

El haz de iones se hizo incidir sobre un blanco de oro delgado, de 0.37 mg cm⁻² de espesor. en el caso de los protones de 3.0 MeV y 4.4 MeV y de 1.93 mg cm⁻² para los protones de 1.1 MeV y para el haz de ¹²C de 13 MeV, dentro de una cámara de dispersión a alto vacío. A la entrada de la cámara de dispersión se colocó un colimador de Ta de 1.5 mm de diámetro. Los iones, al chocar con el blanco de Au, sufren dispersión de Rutherford, efecto que se usa para irradiar los dosímetros colocados a un cierto ángulo con respecto de la dirección del haz. El arreglo experimental de la irradiación se muestra en la figura 4.1. En esta figura se muestra el haz de iones incidiendo sobre el blanco de oro, el cual está montado en un portablancos en el centro de la cámara de dispersión; la copa de Faraday de frente al haz (voltaje de operación de 300 V) con el fin de colectar la carga del haz primario; el detector de barrera superficial colocado a 135° con respecto de la dirección del haz para registrar los iones dispersados elásticamente y el portadosímetros sobre el cual están montados los TLD-100. En todos los casos el blanco de Au estaba inclinado a ángulo de 20° como se ve en la figura para minimizar las pérdidas de energía de los iones en el blanco. Se utilizó una fuente de partículas α de ²⁴¹Am como referencia para la energía de los iones.

Los TLD-100 fueron colocados en el portadosímetros denominado de altas fluencias. El portadosímetros cuenta con 11 pares de nichos como se muestra en la figura 4.2, cubriendo ángulos que van desde 16° hasta 79.1°. Con este arreglo es posible cubrir hasta tres órdenes de magnitud en la fluencia. Se colocó sobre los dosímetros una película de Mylar de 0.21 mg cm⁻² (1.5 μ m) para impedir su caída de los nichos. Se colocaron películas de tinte

radiocrómico GafChromic MD-55 a lo largo del portadosímetros, entre las dos hileras de nichos sin obstruir los TLDs para verificar la dosis recibida en los dosímetros.



Figura 4.1 Arregio experimental de la irradiación de los TLD-100 sensibilizados. (El DBS es un detector de barrera superficial colocado a 135° con respecto del haz).





Figura 4.2 Diagrama del portadosímetros (a) ubicación de los nichos. (b) Proyección del portadosímetros en un plano mostrando los ángulos a los que corresponde cada nicho. El tornillo marcado 35° es una referencia para indicar la posición angular en la que se coloca el portadosímetros dentro de la cámara de dispersión.

4.2.1 Cálculo de la fluencia

El cálculo de la fluencia en los TLDs se realiza mediante la expresión de la dispersión de Rutherford. El número $N(\theta)$ de las partículas cargadas pesadas dispersadas elásticamente como función del ángulo de dispersión θ se puede expresar como:

$N(\theta) = N_0 (N_A/A)\rho t (d\sigma/d\Omega) \Delta \Omega,$

donde

| $N_0 =$ número de partículas incidentes | (adimensional) |
|--|------------------------|
| $N_A =$ número de Avogadro | (mol ⁻¹) |
| A = masa atómica del blanco | (g mol ⁻¹) |
| ho = densidad del blanco | (g cm ⁻³) |
| t = espesor del blanco | (cm) |
| $(d\sigma/d\Omega) =$ sección eficaz de Rutherford | (cm ⁻²) |
| $\Delta \Omega$ = ángulo sólido del detector | (steradianes) |

La sección de Rutherford para la dispersión elástica está dada por (en el sistema CGS):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{(zZe^2)^2}{(4E)^2} \frac{1}{\sin^4(\theta/2)},$$
(4.2)

donde:

| z | = número | atómico o | del proye | ctil | | (adimensional) |
|---|--------------------|------------|-----------|--|---------------|----------------|
| Z | z = número | atómico | del blanc | 0 | | (adimensional) |
| 0 | = la carga | del electi | rón | n se di si se si se si | a dan kara ka | (1165) |
| 5 | – la caiga | | | | | (ues) |
| Ŀ | <i>i</i> = energía | del proye | ectil | | | (erg) |
| 6 |)= ángulo | de dispers | sión | | | (radianes) |

Se colocó un detector de barrera superficial (DBS) a un ángulo de 135° en cada irradiación. El DBS utilizado fue de la marca ORTEC modelo ULTRA el cual es un detector típico semiconductor que utiliza una capa delgada de silicio para la detección, con una tensión aplicada de +100 V. El DBS tiene un colimador de 2.0 mm de diámetro a la entrada. El funcionamiento del DBS se prueba previamente mediante la emisión de señales conocidas provenientes de un generador de pulsos. La electrónica asociada al equipo se puede revisar en trabajos realizados anteriormente por el grupo de dosimetría, (ver por ejemplo [Av 98]). La medición de los ángulos se realiza con el goniómetro de la cámara de dispersión, y la incertidumbre en esta medición se estima inferior a 1°. Con este dispositivo es posible calcular el número $N_{TLD}(\theta_{TLD})$ de iones que incidieron sobre cada dosímetro, a cada ángulo de dispersión, si se hace el cociente con el número de cuentas en el detector $N_{DBS}(\theta_{DBS})$:

$$\frac{N(\theta_{DBS})}{N(\theta_{TLD})} = \frac{\operatorname{sen}^{4}(\theta_{TLD}/2)\Delta\Omega_{DBS}}{\operatorname{sen}^{4}(\theta_{DBS}/2)\Delta\Omega_{TLD}}$$
(4.3)

Los ángulos utilizados son los medidos en el sistema del laboratorio pero los requeridos en las expresiones anteriores son los correspondientes al sistema de referencia relativo. En el sistema de referencia del laboratorio, la sección de Rutherford está dada por:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}\Big|_{Lab} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E_1}\right) \frac{\left(A\cos\theta + \sqrt{A^2 - \sin^2\theta}\right)}{A\sin^4\theta\sqrt{A^2 - \sin^2\theta}}$$
(4.4)

donde θ es el ángulo de dispersión y E_1 es la energía del proyectil, ambas cantidades medidas en este sistema, y $A = m_2/m_1$ [Ri 01]. La diferencia entre la sección de la ecuación 4.2 y ésta última es más importante para iones incidentes pesados. En este trabajo sería más relevante entonces para la dispersión de ¹²C por el blanco de oro. Sin embargo, para el caso del ¹²C al calcular el cociente de la derecha de la ecuación 4.3 y utilizando la sección de Rutherford en el sistema de laboratorio (ecuación 4.4) la diferencia en la fluencia es típicamente de 0.5% para ángulos menores que 80°. Esta diferencia es todavía menor para protones. Por lo tanto, en este experimento fue suficiente con utilizar la sección de Rutherford de la ecuación 4.2.

Durante cada experimento, la corrida era interrumpida cada vez que se acumulaba cierta cantidad de carga en la copa de Faraday con el fin de guardar el espectro de las cuentas en

el elástico registradas por el DBS como una medida de seguridad para no perder información. En la tabla 4.1 se muestra el estado de carga de los iones antes de incidir sobre el blanco Q_1 , el estado de carga de los iones al salir del blanco Q_2 , la carga integrada por la copa de Faraday (FC) durante el experimento, el número de cuentas en el elástico (DBS), el espesor del blanco de Au y la distancia del blanco a los dosímetros para cada corrida. El estado de carga de las PCPs puede cambiar al atravesar el blanco de Au al intercambiar electrones. El intercambio de electrones puede llegar a un estado de equilibrio, que depende del ion, de su energía y del blanco, durante el cual se tiene una distribución de los estados de carga posibles al que se le puede asociar un estado de carga promedio. La distribución de los estados de carga de algunos iones en distintos materiales se ha reportado en algunos trabajos [Ha 01]. En este trabajo se calculó utilizando la fórmula semi-empírica del trabajo de Montenegro y colaboradores [Mo 82].

| Partícula Q_i $\frac{Blanco Au}{(mg cm^{-2})}$ Q_f Cuentas en el DBS | Carga en FC (C) | R _{TLD} (cm) |
|---|-------------------------|-----------------------|
| Protón 1.1 MeV + 1 1.93 + 1.0 1.97 × 10 ⁶ | 9.60 × 10 ⁻⁶ | 7.4-7.5 |
| Protón 3.0 McV + 1 0.37 + 1.0 2.02 × 10 ⁶ | 8.20×10^{-4} | 7.4-7.5 |
| Protón 4.4 MeV +1 1.93 +1.0 1.96 × 10 ⁶ | 4.64 × 10 ⁻⁴ | 7.5 - 7.6 |
| $^{12}C de 13 MeV + 4 0.37 + 5.1 7.04 \times 10^5$ | 6.53×10^{-4} | 7.5-7.7 |

Tabla 4.1 Algunos parámetros de las irradiaciones en el Peletrón. Q₁ y Q₁ son los estados de carga de los iones antes y después de atravesar el blanco de Au. Q₁ se calculó utilizando la expresión semi-empírica tomada del trabajo de Montenegro y colaboradores [Mo 82].

4.3 Lectura de los TLD-100

La lectura de la señal termoluminiscente se obtuvo utilizando un equipo lector Harshaw 3500 con una tasa de calentamiento de 1°C s⁻¹ desde la temperatura ambiente hasta 265°C. El equipo 3500 en esencia consiste de una plancheta metálica, que se calienta al hacerle pasar una corriente. La plancheta calienta al dosímetro y la luz emitida se detecta con un

tubo fotomultiplicador, todo en una atmósfera de nitrógeno. Los dosímetros siempre fueron leídos del lado expuesto al haz de iones, marcado el lado opuesto con lápiz. El laboratorio se mantuvo a una temperatura de 19°C mediante un sistema de aire acondicionado encendido de manera permanente. El equipo lector está conectado a un equipo de cómputo el cual registra y despliega las curvas de brillo y la integral bajo la curva de brillo (señal total) en nC o μ C. En la figura 4.3 se muestra esquemáticamente este dispositivo.



Figura 4.3 Diagrama del equipo lector termoluminiscente (tomada de [At 86]).

El tubo fotomultiplicador (PMT) que usa el lector 3500 es el modelo R268HA fabricado por Hamamatsu. El PMT convierte la señal termoluminiscente en corriente eléctrica, aprovechando el efecto fotoeléctrico, y la amplifica mediante una sucesión de diferencias de potencial (dinodos) que acelera a los electrones, y que al chocar con los ánodos, se producen más electrones. La respuesta del PMT se encuentra en el espectro visible en un intervalo de longitudes de onda que va desde 300 nm a 650 nm con su máxima respuesta en 420 nm (los picos principales de TLD-100 están en un intervalo de longitudes de onda de aproximadamente 410 a 415 nm [Mc 95]). Es necesario colocar un filtro óptico entre el TLD y el tubo fotomultiplicador cuando la señal total TL es mayor que unos 80 µC para proteger al PMT. Un sistema electrónico integra la señal en el tiempo para obtener un valor de carga eléctrica que es proporcional a la señal termoluminiscente.

4.4 Deconvolución de las curvas de brillo

En las figuras 4.4 a 4.7 se muestran las curvas de brillo para los 4 experimentos a distintas fluencias donde se puede apreciar la evolución y proporción de los distintos picos. En estas curvas el primer pico de izquierda a derecha es el pico 2 que se elimina en el proceso de deconvolución. La deconvolución de las curvas de brillo se realizó utilizando el software comercial de Harshaw/Bicron CGCD, el cual utiliza la aproximación Podgorsak con una forma de pico de brillo dado por la cinética de primer orden de Randall y Wilkins, ecuación 3.4. Para realizar las deconvoluciones se utilizaron 6 picos: pico 3, 4, 5, 6a, 6b y 7 (el pico 2 se elimina utilizando el programa). Se restó un fondo constante.Se mantuvieron fijos algunos parámetros como el canal en donde ocurre el máximo de cada pico y el ancho a media altura o FWHM (*full width at half-maximum*), permitiendo que el programa sólo ajuste la altura. Los parámetros se ajustaron de acuerdo a otros trabajos con TLD-100 sensibilizados [Ho 01b] y a la evolución con la fluencia de las curvas. En la tabla 4.2 se muestran los parámetros individuales para los TLD-100 sensibilizados irradiados con cada partícula y en la figura 4.8 se muestran algunas curvas típicas con sus deconvoluciones.



Figura 4.4 Curvas de brillo de TLD-100 sensibilizados, irradiados con protones de 1.1 MeV para fluencias que van desde 6.2×10⁸ (abajo) hasta 2.8×10¹¹ cm⁻² (arriba).



Figura 4.5 Curvas de brillo de TLD-100 sensibilizados, irradiados con protones de 1 3.0 MeV para fluencias que van desde 6.4×10⁸ (abajo) hasta 2.9×10¹¹ cm⁻² (arriba).





Figura 4.6 Curvas de brillo de TLD-100 sensibilizados, irradiados con protones de 4.4 MeV para fluencias que van desde 6.2×10⁸ (abajo) hasta 2.8×10¹¹ cm⁻² (arriba).



Figura 4.7 Curvas de brillo de TLD-100 sensibilizados, irradiados con ¹²C de 13.0 MeV para fluencias que van desde 2.2×10⁸ (abajo) hasta 1.0×10¹¹ cm⁻² (arriba).



| Partícula Energía (MeV) | Pico | FWHM (°C) | T _m (°C) |
|--|--------------|--------------------|----------------------|
| ¹ H 1.1 | 3 | 39.75 | 153.7* |
| | 4 | 31.8 | 176.2* |
| | 5 | 23.85 | (205.4) 204.3 ± 1.9 |
| and a second | 6a | 23.85 | 217.3 |
| n for a second state of the second state of th | 6b | 23.85 | 235.9 |
| | 7 | 30.5 | 261.0 |
| ¹ H 3.0 | 3 ⊨ : | (39.75) 37.8 ± 1.7 | 153.7* |
| | 4 | 31.8 | 176.2 |
| | 5 | 23.85 | (205.4) 206 ± 2.4 |
| | 6a | 23.85 | 217.3 |
| | 6b | 23.85 | 235.9 |
| | 7 | 30.5 | 261.0 |
| ¹ H 4.4 | 3 | (39.75) 36.3 ± 0.8 | 153.7* |
| | 4 | 31.8 | 176.2 |
| | 5 | 23.85 | (205.4) 207.2 ± 1.7 |
| | 6a | 23.85 | 217.3 |
| | 6b | 23.85 | 235.9 |
| | 7 | 30.5 | 261.0 |
| ¹² C 13.0 | 3 | 43.7 | (153.7*) 150.1 ± 2.9 |
| | 4 | 31.8 | (176.2) 175.0 ± 1.5 |
| | 5 | 23.85 | (205.4) 203.4 ± 1.5 |
| | 6a | 23.85 | 217.3 |
| | 6b | 23.85 | 235.9 |
| | 7 | 30.5 | 261.0 |

Tabla 4.2 Parámetros de ancho a media altura (FWHM) y la posición del máximo de cada pico para la deconvolución de las curvas de brillo. Entre paréntesis se muestra el valor sugerido al programa de cómputo, a la derecha el valor promedio y la desviación estándar. *Este canal se fijó para todas las fluencias excepto para las dos más altas. Los dosímetros fueron leídos de 0-265°C a una tasa de calentamiento de 1°C s⁻¹.

56



Figura 4.8 Algunas curvas de brillo y sus deconvoluciones de TLD-100 sensibilizados y leídos hasta 265°C irradiados con (a) protones de 3 MeV a una fluencia de 9.42×10^9 cm⁻² (b) protones de 3 MeV a una fluencia de 2.86×10^{11} cm⁻² (c) ¹²C de 13 MeV a una fluencia de 3.09×10^8 cm⁻² (d) ¹²C de 13 MeV a una fluencia de 3.95×10^{10} cm⁻².

4.5 Pérdida de energía de los iones

Los iones provenientes del acelerador sufren pérdidas de energías importantes antes de llegar a los TLDs tanto en el blanco de oro como en el Mylar que cubre a los dosímetros. La energía con la que finalmente llegan los iones a los cristales depende del ángulo, con



respecto de la dirección del haz, al que se encuentre cada uno. Es importante considerar esta pérdida de energía para poder comparar la respuesta de los dosímetros, como si todos hubieran recibido iones de la misma energía en cada experimento.

Para calcular la pérdida de energía en el blanco, consideremos la figura 4.9 que es un acercamiento al blanco de la figura 4.1.



Figura 4.9 Esquema que muestra la trayectoria de un ion que incide sobre un blanco de oro de espesor t inclinado 20°. El cálculo de la pérdida de energía supone que los iones llegan en promedio a la mitad del ancho efectivo del blanco, x/2, y que es ahí donde son dispersados. Los iones recorren entonces una distancia $d(\theta_{TLD})$ dentro del blanco antes de incidir sobre el mylar que cubre a los TLDs. Finalmente, los iones, después de haber sufrido pérdidas de energía en el blanco y en mylar, inciden sobre los cristales.

El cálculo de la pérdida de energía supone que los iones son dispersados a una profundidad igual a la mitad del ancho efectivo. Si el blanco es de espesor t, como está inclinado por 20° como se ve en el diagrama, entonces es fácil ver que el grosor efectivo x es:

Entonces, los iones son dispersados cuando han recorrido una distancia de x/2 dentro del blanco y la pérdida de energía en este trayecto se puede aproximar como el poder de frenado del ion con energía incidente E_0 multiplicado por x/2. En este punto, los iones tienen entonces una energía $E_1 = E_0 - (x/2)(-dE_0/dx)$.

 $x = \frac{t}{\cos 20^\circ}$

Los iones dispersados en x/2 recorren una distancia $d(\theta_{TLD})$ dentro del blanco, donde sufren nuevamente pérdidas de energía. Estos iones dispersados inicialmente tienen una energía igual $E_2 = k E_1$, donde $k = k(\theta_{TLD})$ es el factor cinemático. Este factor relaciona a la energía inicial E_1 del ion con la energía final E_2 después de haber sufrido una colisión elástica con un núcleo del blanco:

$$E_2 = kE_1 \tag{4.6}$$

(4.5)

Utilizando las leyes de conservación de energía y momento se puede ver que el factor cinemático está dado por:

$$k = \left\{ \frac{m_1 \cos \theta + \sqrt{m_2^2 - m_1^2 \sin^2 \theta}}{m_1 + m_2} \right\}^2.$$
(4.7)

De la figura 4.9, con un poco de geometría se identifica que la distancia $d(\theta_{TLD})$ es igual a:

$$d = \frac{t}{2\cos(20^\circ - \theta_{TLD})}.$$
 (4.8)

La energía con la que salen los iones del blanco E_3 es función del ángulo θ_{TLD} , ya que a distintos ángulos de los TLDs los iones habrán recorrido distancias distintas. Esta energía es igual a E_2 menos la pérdida de energía dentro del blanco, dada por el poder de frenado multiplicado por la distancia d.

Para cada energía $E_3(\theta_{TLD})$ se calcula el poder de frenado del ion en el-Mylar para así calcular la energía $E_3(\theta_{TLD})$ con la que llegan los iones finalmente a los TLDs. Los cálculos de pérdidas de energía para protones en el blanco de Au fueron realizados utilizando el programa Pstar [Be 99]. Los cálculos de pérdidas de energía de protones en el Mylar y todos las pérdidas de energía para los ¹²C fueron realizadas usando SRIM2000 [Sr 00]. En la tabla 4.3 se muestran las energías con la que los iones finalmente llegan a los TLDs después de haber sufrido pérdidas en el blanco de Au y la película de Mylar.

| θ _{TLD} (.º) | H 1.1 MeV | H 3.0 MeV | H 4.4 MeV | ¹² C 13 MeV |
|-------------------------|-------------|-------------|-------------|------------------------|
| 16.0 | 0.931 | 2.962 | 4.323 | 10.97 |
| 20.2 | 0.931 | 2.962 | 4.322 | 10.94 |
| 25.0 | 0.930 | 2.961 | 4.321 | 10.88 |
| 29.0 | 0.929 | 2.960 | 4.319 | 10.83 |
| 33.5 | 0.928 | 2.958 | 4.317 | 10.76 |
| 38.0 | 0.926 | 2.956 | 4.314 | 10.68 |
| 43.0 | 0.923 | 2.955 | 4.311 | 10.58 |
| 56.9 | 0.911 | 2.948 | 4.297 | 10.24 |
| 64.1 | 0.901 | 2.943 | 4.289 | 10.03 |
| 71.8 | 0.885 | 2.938 | 4.276 | 9.77 |
| 79.1 | 0.863 | 2.932 | 4.261 | 9.48 |
| Promedio | 0.91 ± 0.02 | 2.95 ± 0.01 | 4.30 ± 0.02 | 10.5 ± 0.5 |

Tabla 4.3 Energía (MeV) con la que los iones inciden sobre los TLDs (*E*_{TLD}) para cada ángulo, después de haber sufrido pérdidas en el blanco de Au y el Mylar. En la última fila se muestran los promedios y sus desviaciones estándar.

En las figuras 4.10 a 4.13 se muestran los espectros de los iones dispersados elásticamente en los diferentes experimentos. Los espectros fueron obtenidos con el detector de barrera superficial colocado a 135° con respecto de la dirección del haz incidente, como se muestra en la figura 4.1. En 5.48 MeV se observa el pico correspondiente a partículas α provenientes de la fuente de ²⁴¹Am utilizada como referencia con la cual fue posible pasar de una escala de canales a energías. Se puede notar un espectro más ancho en los iones que sufren pérdidas de energía mayores. Por ejemplo, el espectro de los ¹²C es más ancho que el de protones de 4.4 MeV.



Figura 4.10 Espectro de los protones de 1.1 MeV a 135°. El pico en 5.48 MeV corresponde a partículas α de una fuente de ²⁴¹Am.



Figura 4.11 Espectro de los protones de 3.0 MeV a 135°. El pico en 5.48 MeV corresponde a partículas α de una fuente de ²⁴¹Am.



Figura 4.12 Espectro de los protones de 4.4 MeV a 135°. El pico en 5.48 MeV corresponde a partículas α de una fuente de ²⁴¹Am.



Figura 4.13 Espectro de los ¹²C de 13.0 MeV a 135°. El pico en 5.48 MeV corresponde a partículas α de una fuente de ²⁴¹Am.

Para verificar la energía inicial de los iones, la energía de los iones más energéticos en las figuras 4.10 a 4.13 (los que se dispersaron en la superficie del blanco de Au) debe ser igual que la energía inicial de los iones multiplicada por el factor cinemático k para $\theta = 135^{\circ}$, ecuación 4.7. Los iones menos energéticos detectados en el DBS, es decir, los dispersados en la superficie interna derecha del blanco de Au de la figura 4.14, deben tener una energía menor debido a que sufren pérdidas de energía dentro del blanco. Estas pérdidas ocurren primero cuando el ion atraviesa el ancho efectivo x. Después sufren la dispersión elástica, por lo que se requiere multiplicar a la energía en este punto por el factor cinemático k. Finalmente, los iones pierden energía al viajar una distancia s dentro del blanco en su camino hacia el DBS. La distancia s, de la figura 4.14, se puede ver que es igual a:







En la tabla 4.4 se muestran los resultados de calcular la energía de los iones más y menos energéticos dispersados en el blanco de Au que llegan al DBS durante cada experimento y las obtenidas de los espectros (a media altura) mostrados en las figuras 4.10 a 4.13. Las energías máximas y mínimas coinciden aproximadamente con las que se observan en los espectros, como se ve en la tabla 4.4.

| | | and the second secon | e in the efficiency of the transferred begins | a ante en presente en 2426 en legendo en entre |
|----------------------------------|----------------|---|---|--|
| | Protón 1.1 MeV | Protón 3.0 MeV | Protón 4.4 MeV | ¹² C 13.0 MeV |
| Grosor del blanco Au (mg cm²) | 1.93 T Exp | 0.37 T Exp | 1.93 T Exp | 0.37 T Exp |
| Emáx (MeV) | 1.08 1.05 | 2.95 2.93 | 4.32 4.29 | 10.56 10.68 |
| E _{mín} (MeV) | 0.82 0.84 | 2.92 2.88 | 4.20 4.19 | 9.31 9.24 |

Tabla 4.4 Comparación de la energía máxima (iones dispersados en la superficie del blanco) y mínima (iones dispersados en superficie interna derecha del blanco) calculada (T) y obtenida de los espectros (Exp) de los iones detectados en el DBS colocado a 135°.

La variación en la sección de Rutherford, dada por la ecuación 4.2, debida a las pérdidas de energía de los iones dentro del blanco de Au (al mismo ángulo de dispersión), se calcula haciendo la diferencia de las energías al cuadrado de los iones. Por ejemplo, para protones de 1.1 MeV nominales, la diferencia en la sección de Rutherford (a $\theta = 135^{\circ}$) a la entrada del blanco con respecto a la superficie interna derecha del blanco, donde los iones se dispersan para ir hacia el DBS, es de 24%, factor que explica la inclinación del espectro mostrado en la figura 4.10.

Resultados

En este capítulo se presentan los resultados experimentales y los resultados obtenidos mediante la simulación Monte Carlo. En particular se presentan los resultados de la señal TL y la función de sublinealidad como función de la fluencia para el pico 5. La simulación Monte Carlo se realizó para obtener una función de sublinealidad, que se comparó con la del pico 5.

5.1 Respuesta termoluminiscente como función de la fluencia

La fluencia en cada dosímetro fue calculada utilizando la ecuación 4.3 y su incertidumbre utilizando la fórmula general de propagación de incertidumbres [Ta 97]. Las fuentes de incertidumbres asociadas a la fluencia provienen de: el ajuste del área integrada del pico en el elástico (el número de cuentas en el DBS), la medición de la distancia del blanco al detector, la distancia del detector a los dosímetros, la medición del diámetro del colimador, la medición de los ángulos del detector y del portadosímetros con el goniómetro. Las incertidumbres de estas medidas se tomaron como las reportadas previamente [Av 98] y la propagación de incertidumbres se calculó de la misma forma.
La señal TL del pico 5 se obtuvo al realizar la deconvolución de las curvas de brillo e integrar el área bajo este pico utilizando el programa de deconvolución CGCD. La señal TL del pico 5 reportada es el promedio de la lectura de dos cristales colocados en nichos al mismo ángulo en el portadosímetros e irradiados a la misma fluencia. La incertidumbre se tomó como la desviación estándar de estos dos valores. Para cada ángulo los datos fueron escalados a la energía promedio con la que los iones inciden sobre los dosímetros después de haber perdido parte de ella en el blanco de Au y en el mylar. Estos promedios se muestran en la tabla 5.1 y fueron obtenidos de la tabla 4.3. En las tablas 5.2 a 5.5 se muestran las fluencias y los promedio de las señales TL corregidos por la energía con sus incertidumbres.

| n an | |
|--|--|
| Ion incidente Energía Energía promedio norminal (MeV) en TLD (MeV) | E _{mín} E _{máx} (MeV) (MeV) |
| Protón 1.1 0.91 ± 0.02 Protón 3.0 2.95 ± 0.01 Protón 4.4 4.30 ± 0.02 Carbono 13.0 10.50 ± 0.49 | 0.86 0.93 2.93 2.96 4.26 4.32 9.48 10.97 |

Tabla 5.1 Energía promedio, máximas y mínimas con la que llegan los iones incidentes a los TLD.

En la figura 5.1(a) se muestra la señal TL graficada como función de la fluencia para los TLD-100 sensibilizados, irradiados con protones de 1.1 MeV, 3.0 MeV y 4.4 MeV nominales y en la figura 5.1(b) para los irradiados con ¹²C de 13 MeV nominales. Estas gráficas ya incluyen el escalamiento de la señal TL a la energía promedio de cada ion (ver tabla 5.1). Las líneas quebradas representan un comportamiento lineal.

| and the second se | | | | |
|---|-------------------------------|-----------------------|---------------|-----------|
| θτιο (º) | n (cm-2) | δn (cm²) | STL (u.a.) δS | TL (u.a.) |
| 16.0 | 2.79×10 ¹¹ | 3.64×10 ¹⁰ | 41000 | 4800 |
| 20.2 | 1.10×10 ¹¹ | 1.17×10 ¹⁰ | 64000 | 200 |
| 25.0 | 4.74×10 ¹⁰ | 4.20×10 ⁹ | 54000 | 3000 |
| 29.0 | 2.64×10 ¹⁰ | 2.08×10 ⁹ | 42000 | 300 |
| 33.5 | 1.50×10 ¹⁰ | 1.06×10 ⁹ | 26000 | 300 |
| 38.0 | 9,18×10 ⁹ | 5.96×10 ⁸ | 17000 | 100 |
| 43.0 | 5.70×10 ⁹ | 3.42×10 ⁸ | 12600 | 100 |
| 56.9 | 1.99×10 ⁹ | 1.03×10 ⁸ | 4000 | 200 |
| 64.1 | 1.29×10 ⁹ | 6.34×10 ⁷ | 2600 | 300 |
| 71.8 | 8.63×10 ⁸ | 4.06×10 ⁷ | 1600 | 200 |
| 79.1 | 6.19 <u>×1</u> 0 ⁸ | 2.82×10 ⁷ | <u>1100</u> | 100 |

Tabla 5.2 Fluencia y señal TL del pico 5 de TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones de 1.1 MeV.

| θτιd (°) | n (cm ⁻²) | δn (cm²) | STL (u.a.) δ | STL (u.a.) |
|------------|-----------------------|-----------------------|--------------|------------|
| 16.0 | 2.86×10 ¹¹ | 3.74×10 ¹⁰ | 400000 | 3000 |
| 20.2 | 1.13×10 ¹¹ | 1.20×10 ¹⁰ | 570000 | 14000 |
| 25.0 | 4.86×10 ¹⁰ | 4.31×10 ⁹ | 440000 | 40000 |
| 29.0 | 2.71×10 ¹⁰ | 2.13×10 ⁹ | 310000 | 1000 |
| 33.5 | 1.54×10 ¹⁰ | 1.09×10 ⁹ | 200000 | 24000 |
| 38.0 | 9.42×10 ⁹ | 6.12×10 ⁸ | 150000 | 5000 |
| 43.0 | 5.85×10 ⁹ | 3.51×10 ⁸ | 100000 | 10000 |
| 56.9 | 2.04×10 ⁹ | 1.06×10 ⁸ | 37000 | 300 |
| 64.1 | 1.32×10 ⁹ | 6.51×10 ⁷ | 22000 | 1600 |
| 71.8 | 8.86×10 ⁸ | 4.17×10 ⁷ | 16500 | 400 |
| 79.1 | 6.35×10 ⁸ | 2.90×10 ⁷ | 12200 | 300 |

Tabla 5.3 Fluencia y señal TL del pico 5 de TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones de 3.0 MeV.

| θτιο (°) | n (cm²) | δn (cm-2) | STL (u.a.) | δSTL (u.a.) |
|-------------|-----------------------|-----------------------|------------|--|
| 16.0 | 2.78×10 ¹¹ | 3.63×10 ¹⁰ | 1060000 | 40000 |
| 20.2 | 1.10×10 ¹¹ | 1.17×10 ¹⁰ | 1070000 | 145000 |
| 25.0 | 4.72×10 ¹⁰ | 4.19×10 ⁹ | 820000 | 23000 |
| 29.0 | 2.63×10 ¹⁰ | 2.07×10 ⁹ | 570000 | 24000 |
| 33.5 | 1.49×10 ¹⁰ | 1.06×10 ⁹ | 380000 | 21000 |
| 38.0 | 9.15×10 ⁹ | 5.94×10 ⁸ | 258000 | 5000 |
| 43.0 | 5.69×10 ⁹ | 3.42×10 ⁸ | 182000 | 3000 |
| 56.9 | 1.99×10 ⁹ | 1.03×10 ⁸ | 59000 | 3000 |
| 64.1 | 1.29×10 ⁹ | 6.33×10 ⁷ | 41000 | 3000 |
| 71.8 | 8.61×10 ⁸ | 4.05×10 ⁷ | 28000 | 1400 |
| <u>79.1</u> | 6.17×10 ⁸ | 2.81×10 ⁷ | 22000 | 500 |
| | | | | 11 A A A A A A A A A A A A A A A A A A |

Tabla 5.4 Fluencia y señal TL del pico 5 de TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones 4.4 MeV.

| n (cm ⁻²) δn (cm ⁻²) | STL (u.a.) δSTL (u.a.) |
|--|------------------------|
| 9.97×10 ¹⁰ 1.30×10 ¹⁰ | 30000 1400 |
| 3.95×10 ¹⁰ 4.18×10 ⁵ | 31000 3000 |
| 1.70×10 ¹⁰ 1.50×10 ⁵ | 20000 1300 |
| 9.44×10 ⁹ 7.44×10 ⁸ | ³ 13700 600 |
| 5.37×10 ⁹ 3.80×10 ⁶ | 9000 1000 |
| 3.29×10 ⁹ 2.13×10 ⁶ | 5800 300 |
| 2.04×10 ⁹ 1.23×10 ⁶ | ⁹ 4300 130 |
| 7.13×10 ⁸ 3.69×10 ⁷ | 1700 50 |
| 4.62×10 ⁸ 2.27×10 ⁷ | ⁷ 1200 60 |
| 3.09×10 ⁸ 1.45×10 ⁷ | 900 50 |
| 2.22×10 ⁸ 1.01×10 ⁷ | 600 30 |

Tabla 5.5 Fluencia y señal TL del pico 5 de TLD-100 sensibilizados e irradiados con ¹²C de 13.0 MeV.



Figura 5.1 Scñal TL del pico 5 de TLD-100 sensibilizados e irradiados con (a) protones de 1.1 MeV (■), 3.0 MeV (O) y 4.4 MeV (▲) y (b) con ¹²C de 13 MeV nominales.

5.2 Función de sublinealidad

En este trabajo, por simplicidad se denominará como función de sublinealidad a la función definida por la ecuación 3.9, la que se conoce usualmente como función de supralinealidad; el nuevo nombre es debido a la ausencia de supralinealidad en los TLD-100 sensibilizados de este trabajo. Para reconocer a la región lineal de las curvas mostradas en las figuras 5.1(a) y 5.1(b) (en escala log-log) se traza una recta con pendiente 1 y se identifican los puntos de bajas fluencias que caen sobre esta recta (líneas discontinuas). Al calcular el promedio de la señal TL, por unidad de fluencia, de los puntos que presentan una respuesta lineal con la fluencia, se le da una mayor importancia a aquellos puntos con menor incertidumbre en la señal TL. Para esto, se realiza un promedio pesado por los factores de peso w_i {Apéndice I}. Con este promedio se realiza el cociente de la ecuación 3.9 y se calcula la incertidumbre. En esta sección, para calcular la función de sublinealidad, no se tomó en cuenta el factor de pérdidas de energía del ion en el blanco y Mylar presentados en la tabla 4.3. Los cálculos con el factor de pérdidas de energía se incluyen en la siguiente sección.

En la figura 5.2(a) se presenta la función de sublinealidad del pico 5 como función de la fluencia para los TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones de 1.1, 3.0 y 4.4 MeV. En el caso de las irradiaciones con protones se tomaron los cinco primeros puntos de la gráfica de la figura 5.1(a) para definir la región lineal. En el caso de ¹²C de 13 MeV no resulta tan claro identificar una región lineal. En la figura 5.2(b) se muestra la función de sublinealidad para los dosímetros irradiados con este ion, tomando a los primeros tres puntos de la figura 5.1(b) como los lineales.



Figura 5.2 Función de sublinealidad del pico 5 de TLD-100 sensibilizados irradiados con (a) protones de 1.1 MeV (■), 3.0 MeV (○) y 4.4 MeV (▲) y (b) ¹² C de 13 MeV nominales.



En la figura 5.2(a) y (b) se observa esencialmente un comportamiento lineal-sublineal para todos los conjuntos de datos experimentales. Como ya se mencionó previamente, la ausencia de supralinealidad ocurre por el tratamiento de sensibilización de los dosímetros. Es importante recalcar que en 5.2(a) la función de sublinealidad para las distintas energías es, dentro de las barras de incertidumbre, la misma. Es decir, que básicamente la saturación ocurre a partir de una fluencia de 5×10^9 cm⁻² para todas las energías. En la figura 5.2(b) se observa una pronunciada saturación que comienza a partir de una fluencia de 4×10^8 cm⁻², casi un orden de magnitud menor que para los protones. Sin embargo, la región de linealidad no está bien definida, como si ésta ocurriera para fluencias menores que 2×10^8 cm⁻².

5.3 Resultados de la simulación Monte Carlo

5.3.1 Distribución radial de dosis

4.4 .

La simulación Monte Carlo permite predecir la función de sublinealidad utilizando el modelo de interacción de trazas extendido (ETIM) basado en la estructura de las trazas producidas por las PCPs incidentes a través de su depósito radial de energía en un cristal de LiF. El primer paso consiste en realizar cálculos que permiten determinar la distribución radial de la dosis alrededor del centro de las trazas durante la irrdiación de LiF con PCPs [Av 00]. El tratamiento de este problema involucra seguir a los electrones secundarios a lo largo de sus trayectorias, considerando pérdidas de energía por procesos de frenado electrónico con el material y colisiones elásticas con los núcleos atómicos, en las cuales se producen cambios en la dirección de la trayectoria. Ávila en 2000 reporta resultados de una simulación Monte Carlo, en la que se decide al azar qué tipo de interacciones les ocurren a los electrones y los sigue casi hasta su frenamiento. Cuando los electrones pierden energía, ésta se acumula en cáscaras cilíndricas alrededor de la traza, generalmente de un 1 Å de espesor, permitiendo conocer el depósito de energía radial.

Como se había mencionado en el capítulo 3, la descripción de la estructura de las trazas en el ETIM se realiza a través de las distribuciones de probabilidad de ocupación de los LCs, calculadas tomando como base las distribuciones radiales de dosis producidas por el ion conforme atraviesa el cristal. Estas DRDs son obtenidas por cálculos Monte Carlo dividiendo la traza en N segmentos de traza a lo largo de la trayectoria del ion [Av 00].

Las PCPs al atravesar el cristal de LiF van perdiendo energía hasta detenerse a una profundidad que en promedio es igual al alcance de los iones en este material. Al dividir las trazas en N segmentos se puede estudiar la pérdida de energía en cada uno de ellos, utilizando la energía incidente en el nuevo segmento como la energía con la que sale del anterior. Esto se ilustra en la figura 5.3. De esta manera la descripción completa de la estructura de una traza requiere del uso de N distribuciones radiales de dosis, tantas como segmentos de traza se hayan considerado.

En la tabla 5.6 se muestra, para cada combinación ion-energía, los segmentos de traza utilizados en este trabajo, la energía del ion y la profundidad de cada segmento de traza en LiF.

| an de service per la sua 21 - Contra Contra Ser 2 - Contra Contra Service | <u>H, 0.9</u> 1 | <u>MeV</u> | <u>H, 2.95</u> | MeV | <u>H, 4.30</u> | <u>MeV</u> | ¹² C, 13 | <u>3 MeV</u> |
|---|-----------------|------------|----------------|---------|----------------|------------|---------------------|--------------|
| Segmento | Prof. (μm) | E (MeV) | Prof. (µm) | E (MeV) | Prof. (µm) | E (MeV) | Prof. (µm) | E (MeV) |
| a | 0 | 0.91 | 0 | 2.95 | 0 | 4.31 | 0 | 10.50 |
| b | 0.5 | 0.88 | 3.45 | 2.86 | 6.55 | 4.18 | 0.3 | 10.04 |
| С | 1.67 | 0.81 | 10.73 | 2.67 | 20.38 | 3.91 | 1.09 | 8.82 |
| d | 2.84 | 0.74 | 18.01 | 2.48 | 34.21 | 3.63 | 1.88 | 7.58 |
| е | 4.01 | 0.66 | 25.29 | 2.26 | 48.04 | 3.33 | 2.67 | 6.31 |
| f | 5.18 | 0.58 | 32.57 | 2.04 | 61.87 | 3.00 | 3.46 | 5.03 |
| g | 6.35 | 0.49 | 39.85 | 1.79 | 75.70 | 2.66 | 4.25 | 3.74 |
| ĥ | 7.52 | 0.39 | 47.13 | 1.52 | 89.53 | 2.28 | 5.04 | 2.46 |
| i - | 8.69 | 0.28 | 54.41 | 1.22 | 103.36 | 1.85 | 5.83 | 1.23 |
| | 9.86 | 0.15 | 61.69 | 0.86 | 117.19 | 1.35 | 6.62 | 0.20 |
| k | | | 68.97 | 0.42 | 131.02 | 0.72 | | • |

Tabla 5.6 Energía de los iones incidentes en cada segmento de traza en LiF para cada combinación ionenergía. Basados en estos valores, en la figura 5.4(a) se muestra una gráfica del poder de frenado como función de la energía para protones en LiF, donde se indican con puntos las distintas energías a las que se encuentran los iones en cada segmento de traza calculado. Se puede ver que los puntos de energías más bajas para los protones de energía inicial 0.91 MeV están muy cerca del pico de Bragg. En la figura 5.4(b) se muestra lo mismo pero para ¹²C con energía inicial de 10.5 MeV. En esta figura se observa cómo la mayor parte de los puntos están sobre el pico de Bragg.

En la figura 5.5 se muestran las distribuciones radiales de dosis para los segmentos de traza en los que fue dividida una traza de cada combinación ion-energía de este experimento en LiF. Los segmentos de traza están etiquetados con letras de la a en adelante, tal como se mostra en la figura 5.3 y en la tabla 5.5. Los cálculos fueron realizados por la Dra. Olga Ávila del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ).



Figura 5.3 La traza de un protón de 0.91 MeV dividida en 10 segmentos de traza. Se indica la energía con la que inciden los protones en cada segmento. El primer segmento de traza es de 0.5µm de altura y los siguientes de 1.17 µm cada uno.





Figura 5.4 (a) Poder de frenado de protones en LiF; sobre la línea sólida se muestran los puntos correspondientes a las energías de los protones en cada segmento de traza con energías iniciales de 0.91 MeV (■), 2.95 MeV (O) y 4.30 MeV (▲). (b) Poder de frenado de ¹²C en LiF y los puntos correspondientes a las energías en cada segmento de traza, con energía inicial 10.5 MeV.









Figura 5.5 Distribución radial de dosis de: (a) Protones de 0.91 MeV en LiF (protones nominales de 1.1 MeV) para los segmentos en los que fue dividida la traza etiquetados de la a a la i, con a el primer segmento de traza. El primer segmento es de 0.5 μm y los siguientes de 1.17 μm de grosor cada uno; (b) Protones de 2.95 MeV (3.0 MeV nominales) con el primer segmento de 3.45 μm y los siguientes de 7.28 μm de grosor; (c) Protones de 4.30 MeV (4.4 MeV nominales) con el primer segmento de 6.55 μm y los siguientes de 13.83 μm de grosor; (d) ¹²C de 10.5 MeV (13 MeV nominales) para el primer segmento de 0.3 μm y los siguientes de 0.79 μm de grosor. (Cálculos realizados por la Dra. Olga Ávila del ININ).

5.3.2 Distribuciones radiales de probabilidad de ocupación

Conociendo la distribución radial de dosis es posible conocer la probabilidad de ocupación P de que los centros luminiscentes estén ocupados por algún electrón mediante la ecuación (3.11):

$$P = n_{LC} / N_{LC} = [1 - \exp(-\beta_{LC}D)]$$
(5.1)

Como se mencionó previamente, la densidad de ocupación de los LCs con $\beta_{LC} = 3.1 \times 10^{-3}$ Gy⁻¹ es la que determina la respuesta de pico 5 a PCPs [Ho 01c]. En la figura 5.6 se muestran las distribuciones de probabilidad de ocupación de LCs, calculadas utilizando la ecuación 5.1, como función de la distancia radial para las correspondientes distribuciones radiales de la figura 5.5.

A partir de estas distribuciones es interesante tratar de visualizar la forma de la traza conforme la PCP atraviesa el cristal, en términos de los LCs activados. En la figura 5.7 se muestra la profundidad como función de la distancia radial a la cual se tiene una probabilidad de ocupación del 50%, r_{50} ; en (a) para protones de 4.30 y 2.95 MeV y en (b) para protones de 0.91 MeV y 12 C de 10.5 MeV. Hay que notar que la escala de la profundidad igual a cero). En 5.7(a) se puede ver, por ejemplo, cómo la probabilidad del ion en el cristal aumenta. Esto hasta que, a una cierta profundidad, r_{50} comienza a disminuir.



TESIS CON FALLA DE ORIGEN



Figura 5.6 Probabilidad de ocupación de los centros luminiscentes como función de la distancia radial para (a) protones de 0.91 MeV, (b) protones de 2.95 MeV, (c) protones de 4.30 MeV y (d) ¹²C de 10.5 MeV.







Figura 5.7 r_{50} para (a) protones de 4.30 y 2.95 MeV y (b) para protones de 0.91 MeV y 12 C de 10.5 MeV.



5.3.3 Cálculo de la función de sublinealidad

Utilizando los datos de la gráfica 5.6 de probabilidad radial de ocupación de los LCs para los *N* segmentos que componen una traza se considera que la integral bajo cada curva de la probabilidad de ocupación es proporcional al número de centros luminiscentes activados y por tanto a la señal TL emitida durante el calentamiento del cristal. Dado que las trazas son tridimensionales, para la simulación Monte Carlo es importante realizar los cálculos en una gráfica tridimensional de la distribución de probabilidad de ocupación. La simulación genera posiciones de las trazas de manera aleatoria (el número de trazas depende de la fluencia a la cual se estén realizando los cálculos), e integra numéricamente la probabilidad de ocupación, generando posiciones al azar de puntos en la superficie del cristal, tomando en cuenta únicamente los que están en el volumen debajo de esta función. Entre más posiciones son generadas por el programa, mejor es la aproximación a la integral del volumen.

La cantidad $1 + f_{sub}(n)$ se calcula suponiendo que la señal TL es proporcional al número total de LCs activados en las trazas. La función de sublinealidad se calcula haciendo el cociente del número de LC activados para una fluencia dada entre el número total de LCs activados como si no hubiera traslape de las trazas. Se desprecian efectos de borde y se supone que los centros competitivos ya están desactivados (por el proceso de sensibilización). Este procedimiento se realizó para cada segmento de traza y para todas las corridas del experimento.

La función de sublinealidad total se obtuvo de realizar la suma de la f(n) de los segmentos individuales de las trazas pesadas por un factor de peso. El factor de peso se tomó como el cociente del número de LCs activados en el segmento de traza entre el número total de LC activados en toda la traza. Para esto es necesario calcular el número de LCs activados en cada segmento de traza, lo que se realiza suponiendo que este número es proporcional a la probabilidad de ocupación multiplicada por el volumen de cada segmento. La probabilidad de ocupación es función de la distancia radial por lo que hay que tomar en cuenta la contribución de cada cáscara en la que se divide cada segmento de traza. Así, el factor de peso del segmento k-ésimo W_k queda expresado por:

$$W_{k} = \frac{h_{k} \left(\sum_{j} P_{j} \pi (r_{j}^{2} - r_{i}^{2})_{j}\right)_{k}}{\sum_{n} h_{n} \left(\sum_{j} P_{j} \pi (r_{j}^{2} - r_{i}^{2})_{j}\right)_{n}},$$
(5.3)

donde h_k es la altura del segmento k-ésimo, P_j es la probabilidad de ocupación de los LCs y r_f y r_i son los radios de las cáscaras en las que se dividen los segmentos de trazas. En la figura 5.8 se muestra la función de sublinealidad obtenida de la simulación MC para (a) protones de 0.91 MeV, (b) protones de 2.95 MeV, (c) protones de 4.30 MeV y (d) ¹²C de 10.5 MeV. Las líneas punteadas representan las contribuciones individuales de los segmentos de traza, etiquetadas con letras, a es el primer segmento; la línea sólida es la suma pesada. La simulación MC fue realizada por la Dra. Mercedes Rodríguez Villafuerte.











Figura 5.8 Función de sublinealidad obtenida de la simulación MC para (a) protones de 1.1 MeV, (b) protones de 3.0, (c) protones de 4.4 MeV y (d) ¹²C de 13 MeV nominales. Las líneas punteadas representan las contribuciones individuales de los segmentos de traza, a es el primer segmento de traza; la línea sólida es la suma pesada. La línea discontinua representa línealidad.

5.3.4 Comparación entre simulación MC y experimento

En la figura 5.9 se muestra una gráfica de la función de sublinealidad como función de la fluencia para los resultados experimentales y la simulación MC para los protones de 0.91 MeV, 2.95 MeV y 4.30 MeV (1.1, 3.0 y 4.4 MeV nominales). Los puntos experimentales fueron escalados individualmente a las energías promedio con la que los iones incidieron sobre los dosímetros, las cuales se muestran en la tabla 5.1. Se puede observar de esta figura que la predicción de la simulación Monte Carlo muestra una clara diferencia entre la función de sublinealidad entre las energías de 0.91 MeV y las energías de 2.95 MeV y 4.30 MeV, pero no así entre las últimas dos que parecen prácticamente las mismas.





Figura 5.9 Comparación entre los resultados experimentales (símbolos) y la simulación Monte Carlo (líneas) de la función de sublinealidad para TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones de 0.91 MeV (■), 2.95 MeV (O) y 4.30 MeV (▲). Los puntos de los datos experimentales fueron escalados usando el factor de pérdidas de energía.

En la figura 5.10 se muestra la comparación entre la simulación Monte Carlo y los datos experimentales de las irradiaciones de TLD-100 sensibilizados con ¹²C de 10.5 MeV (13.0 MeV nominales). En este caso la predicción MC difiere más de los resultados experimentales que en el caso de los protones. Es evidente que aún para fluencias bajas la discrepancia es importante.





Figura 5.10 Comparación entre los resultados experimentales y la simulación Monte Carlo de la función de sublinealidad para TLD-100 sensibilizados irradiados con ¹²C de 10.5 MeV.





| | n a transfer and an | | |
|---|--|------------------------------|--|
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | for the second second | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | a and an an an a sa an in the same | | · · · · · · · · · · · · · · · · · · · |
| | | | |
| and a state of the second s | and the second second second second | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| a ser al ser a ser a ser a la ser a se | | | and the second |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | and the second | | |
| | | | |
| | | | |
| engen og en en staar fan de geskelike op en teelste stere | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| and a state of the second state | فالسي من المالية عالياته منه بعد من معام معام المالين معرف معنه والم | | |
| and a second | 1 1 1 1 1 1 1 1 1 4 4 4 4 4 4 4 4 4 4 4 | j | |
| (2) Representation of the second s | a sand and the second | . 1 | |
| | PATT 1 DT CONCEN | | |
| | FREE, DE ORGEN | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | | |
| | | and the strange of a | |
| negravni se se se nega a secolo se se secolo se se SAS secolos se finite religio gana se se se secolo se secol Secolo se secolo se | ere and a second of the second se | aga shina an wasan ƙwallon ƙ | an ann an tha ann an tha an |
| | | | |

Discusión y conclusiones

6

6.1 Deconvolución de las curvas de brillo.

En este trabajo se irradiaron cristales TLD-100 sensibilizados con protones de 1.1 MeV, 3.0 MeV y 4.4 MeV, y con ¹²C de 13.0 MeV (energía nominal) con el objetivo de estudiar la saturación de la respuesta termoluminiscente del pico 5 como función de la fluencia, la energía y el tipo de partícula. Para esto se realizó la deconvolución de las curvas de brillo utilizando parámetros similares a aquéllos usados en trabajos anteriores con TLD-100 sensibilizados e irradiados con iones de helio [Ho 01c].

La deconvolución de las curvas de brillo se había realizado originalmente con 5 picos: el 3, 4, 5, 6 y 7. Sin embargo, la deconvolución de las curvas de brillo a altas fluencias presentó dificultades en el ajuste debido a su estructura tan complicada en la región de altas temperaturas. Por esta razón se introdujo un nuevo pico dosimétrico entre el 6 y 7 para utilizar un total de 6 picos: 3, 4, 5, 6a, 6b y 7. A fluencias altas las curvas de brillo se ven deformadas de manera importante, sobre todo por la evolución de los picos 6a, 6b y 7 que parecen tener un comportamiento supralineal. Aunque el ajuste no fue perfecto en todos los casos, para propósitos de este trabajo, que estuvo enfocado a la respuesta del pico 5, fue suficiente que este pico estuviera bien identificado al efectuar la deconvolución. En casi todos los casos se mantuvo fijo el ancho a media altura (FWHM), dejando la altura de los picos libre durante el ajuste. En algunos casos, se le permitió al programa ajustar el canal de los picos de baja temperatura, en especial a fluencias altas. Para el pico 5, se le permitió al programa ajustar el canal del máximo en todos los casos. Se tuvo cuidado en mantener fijos los canales a los cuales ocurren los máximos de los picos de alta temperatura para evitar en lo posible que éstos, en particular el 6a y 6b, "invadieran" al pico 5 para fluencias altas. (Es importante mencionar que dado que el intervalo de lectura de los TLD-100 fue de temperatura ambiente a 265°C utilizando 200 canales, un canal corresponde a 1.325°C).

Una dificultad adicional se presentó al observar un corrimiento en la temperatura a la que ocurre el máximo del pico 5 conforme la fluencia de PCPs aumentaba. El canal de este pico se mantuvo libre dejando que el programa lo ajustara. Un ligero corrimiento se observó en el pico 5 y el pico 3 tuvo una cierta libertad de recorrerse algunos canales para ajustarse. En la figura 6.1 se muestra la temperatura a la que ocurre el máximo, T_m , del pico 5 como función de la fluencia para todos los iones de este trabajo. Se puede notar un corrimiento de T_m hacia temperaturas menores conforme aumenta la fluencia. También se puede observar una dependencia de T_m con la energía del ion. Es interesante hacer notar que en el caso de 12 C de 10.5 MeV (13 MeV nominales) la energía por nucleón es de 0.88 MeV aproximadamente, similar en magnitud a los protones de 0.91 MeV.

Este comportamiento del pico 5 no se ha observado en la respuesta de TLD-100 normal (sin sensibilizar) a PCPs [Ga 01, Ro 00]. Este efecto pareciera ser producido por el proceso de sensibilización, tal como se confirma cualitativamente en el Apéndice II. En la figura 6.2 se muestra una gráfica de la temperatura del pico 5, en la zona lineal para cada ion, como función del alcance R en LiF.



Figura 6.1 Temperatura a la que ocurre el máximo del pico 5 como función de la fluencia para protones de 0.91 MeV(■), 2.95 MeV (O), 4.30 MeV (▲) y ¹²C (★) de 10.50 MeV.





6.2 La función de sublinealidad

De la figura 5.2(a) se observa que el inicio de la sublinealidad ocurre aproximadamente a una fluencia de 5×10^9 cm⁻² para todas las energías de los protones. Este resultado destaca por ser inconsistente con la predicción de los modelos TIM y ETIM, los cuales muestran una dependencia con la energía. Ya se había observado un resultado similar en TLD-100 sensibilizado e irradiado con ⁴He de 2.6 y 6.8 MeV [Ho 01c]. En ese estudio, la función de sublinealidad para el pico 5 era, dentro de las incertidumbres experimentales, la misma para ambas energías y la saturación comenzaba a darse a una fluencia aproximadamente de 4×10^9 cm⁻², muy-parecido a los resultados de este trabajo.

En el caso de TLD-100 sin sensibilizar se ha observado también la independencia de la saturación con la energía. En irradiaciones con ⁴He de 3 y 7.5 MeV la saturación de la señal del pico 5 empieza a fluencias de 4×10^{10} cm⁻² [Ro 00], un orden de magnitud mayor que en el caso de TLD-100 sensibilizados. Sin embargo, para irradiaciones con protones de 0.7 MeV, 1.5 MeV y 3.0 MeV, la sublinealidad comienza a una fluencia de alrededor de 7×10^{10} cm⁻², 8×10^{10} cm⁻² y 2×10^{11} cm⁻², respectivamente, mostrando una ligera dependencia con la energía del ion, como se muestra en la figura 6.3 [Ga 01].

En el caso de TLD-100 sensibilizado e irradiado con ¹²C de este trabajo, la saturación es evidente a fluencias por arriba de 4×10^8 cm⁻², casi un orden de magnitud menor que para los protones. Sin embargo, no fue claro definir la región de linealidad, como si ésta ocurriera para fluencias menores que 2×10^8 cm⁻², por lo que se requiere de más datos experimentales para fluencias bajas. En la figura 5.2(b) se muestra f(n) tomando como los puntos lineales a los tres de más baja fluencia de la figura 5.1(b). Si se toman los primeros cinco puntos, entonces sólo los dos primeros caen por arriba de la línea punteada que representa linealidad. Estudios posteriores con este ion a distintas energías también ayudarán a confirmar los resultados antes mencionados para este ion.



Figura 6.3 Función de supralinealidad de TLD-100 normales irradiados con protones de (a) 0.7 MeV, (b) 1.5 MeV y (c) protones de 3.0 MeV. Figura tomada de [Ga 01].

6.3 La función de sublinealidad usando MC-ETIM

La simulación Monte Carlo usando el modelo ETIM (MC-ETIM) permitió calcular la función de sublinealidad para cada experimento, como se muestra en las figuras 5.9 y 5.10. Los resultados de la simulación muestran una diferencia en la función de sublinealidad entre los protones de energía 0.91 MeV y los de 2.95 MeV y 4.30 MeV pero no así entre las últimas dos energías. En el caso de protones de 0.91 MeV la predicción del modelo es buena hasta fluencias de 3×10^{10} cm⁻² pero falla en predecir la saturación de la respuesta a fluencias mayores. Es interesante relacionar este resultado con las gráficas mostradas en la figura 5.7, que muestran la profundidad como función de la distancia radial a la cual se tiene una probabilidad de ocupación de los LCs del 50%, r_{50} .

De la figura 5.4 se puede notar que las energías de los iones en cada segmento de traza, para los protones de energía inicial de 0.91 MeV y los ¹²C de 10.5 MeV están sobre o muy cercanos al pico de Bragg. Esto es, los iones tienen energías a las cuales el poder de frenado en LiF es máximo. En el caso de los protones de energías iniciales de 2.95 y 4.30 MeV son las energías de los iones en su último trayecto de la traza que se aproximan al pico de Bragg. Es importante resaltar que la simulación Monte Carlo utiliza como energía incidente de los iones sobre el cristal al promedio de la energías con las que llegan a los dosímetros, cuando la energía de los iones incidentes es en realidad función del ángulo al que fueron colocados en la cámara de dispersión. Esto podría ser estudiado en más detalle, aunque se espera que el efecto pudiera ser pequeño.

6.4 Conclusiones

En este trabajo se estudió la respuesta sublineal de TLD-100 sensibilizados a protones y carbonos de baja energía. Con el proceso de sensibilización se obtuvo una respuesta del pico 5 que no muestra supralinealidad, sólo un comportamiento lineal-sublineal, tal como se esperaba.

Se observó la independencia de la saturación con la energía del ion para protones de bajas energías. Este resultado, que no es posible explicar en términos de los modelos TIM y ETIM, es evidente al comparar la función de sublinealidad para cada energía de los protones, que parece ser dentro de las incertidumbres, la misma, y en donde se observa un inicio de la saturación a prácticamente la misma fluencia. Este resultado, confirma lo que se había observado previamente en trabajos realizados por el grupo de dosimetría de la UNAM [Br 02].

En el caso de los iones de ¹²C, para corroborar la independencia de f(n) con la energía se necesitan irradiaciones con este ion a energías distintas a las usadas en este trabajo. Además, la región de linealidad no quedó bien establecida, por lo que la función de

sublinealidad mostrada en este trabajo es un resultado preliminar y puede confirmarse a través de nuevos experimentos.

La función de sublinealidad de este trabajo, obtenida con la simulación Monte Carlo, basada en el Modelo Extendido de Interacción de Trazas, no muestra un acuerdo con los resultados experimentales. En el caso de irradiaciones con protones, esta función se ajusta al experimento a fluencias bajas, pero es incapaz de predecir la saturación para altas fluencias. En la simulación se obtienen funciones de sublinealidad que no muestran ninguna dependencia con la energía cuando se comparan la de protones de 2.95 MeV y 4.30 MeV. Para ¹²C de 10.5 MeV, la predicción del MC-ETIM de la sublinealidad no está en acuerdo con el experimento. Sin embargo, se requiere identificar la región de linealidad con nuevas irradiaciones a fluencias bajas.

Es importante mencionar que la implementación del MC-ETIM considera solamente la saturación de los centros luminiscentes activados como función de la dosis y no toma en consideración posibles daños físicos en el cristal debido a las altas dosis depositadas, particularmente en la centro de la traza. Esta podría ser una posible causa de la incapacidad del modelo para explicar los efectos de saturación observados experimentalmente.

La formulación de modelos que intentan describir el fenómeno de la termoluminiscencia, las relaciones entre los picos que conforman a las curvas de brillo y los defectos y otras propiedades, aunque hasta ahora se han encontrado con resultados experimentales que los desaprueban, deben seguir siendo desarrollados y mejorados. Se debe aceptar, sin embargo, que la dosimetría termoluminiscente, desarrollada en gran parte de forma empírica, posee un gran potencial de aplicaciones que se amplía conforme se aumenta la comprensión de la física detrás de estos complejos problemas.



APENDICE I

Fórmula general de propagación de incertidumbres y promedios pesados

I.1 Fórmula general de propagación de incertidumbres

Si se tiene una cantidad $y = f(x_1, x_2, ..., x_n)$ donde las variables $x_1, x_2, ..., x_N$ tienen asociada una incertidumbre $\delta x_1, \delta x_2, ..., \delta x_n$, respectivamente, entonces se calcula la incertidumbre δy , con la siguiente expressión:

$$\delta y = \sqrt{\sum_{i=1}^{N} \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 (\delta x_i)^2} , \qquad (AI.1)$$

la cual se conoce como la fórmula general de propagación de incertidumbres.

I.2 Promedios pesados

Si se desea obtener un promedio de N valores independientes x_i , que tienen asociada una incertidumbre δx_i , de tal forma que se le de un mayor peso a aquellos que tengan una incertidumbre menor, se realiza un promedio pesado por los factores de peso w_i :

$$\langle x \rangle = \frac{1}{\alpha} \sum_{i=1}^{N} w_i x_i^{\prime},$$
 (AI.2)

donde $\alpha = \sum_{j=1}^{N} w_j$. Utilizando la fórmula general de propagación de incertidumbres la

incertidumbre de este promedio pesado queda expresada como:

$$\delta_{ex>} = \left(\sum_{i=1}^{N} w_i\right)^{-1/2}, \qquad (AI.3)$$

donde el factor de peso está dado por:

$$w_i = \frac{1}{(\delta x_i)^2} \,. \tag{AI.4}$$

La deducción de estas expresiones se puede ver en [Kn 89] o en [Ta 97].

APENDICE II

Cambios en la curva de brillo de TLD-100 debido al proceso de sensibilización: Un estudio cualitativo

II.1 Motivación de este estudio

El proceso de sensibilización descrito en el capítulo 3 sección 3.10 y propuesto en la literatura con base en observaciones experimentales cumple con el objetivo de aumentar la sensibilidad de los dosímetros suprimiendo la respuesta supralineal de TLD-100 a PCPs, tal como lo muestran los datos experimentales en este trabajo (ver figuras 5.1 y 5.2). Sin embargo, la sensibilización pareciera tener efectos en la forma de la curva de brillo debido a: a) la contribución de los picos de baja y alta temperatura, b) la posición de la temperatura a la que ocurre el máximo del pico dosimétrico (ver figura 6.1) y c) la lectura residual (segundas lecturas) de los dosímetros.

Con respecto a este último punto es importante notar que normalmente la señal TL se determina experimentalmente como la diferencia entre señales de dos medidas por separado: una de ellas correspondiente a la señal TL inducida por la radiación más la señal de fondo, y otra que mide sólo la señal de fondo [Ho 84].

Las lecturas de la señal residual se obtienen de una segunda lectura del dosímetro. Al usar TLD-100 normal (sin sensibilizar), tradicionalmente la intensidad I(T) de la segunda lectura se atribuye a contribuciones de la emisión en el infrarrojo proveniente de la radiación de cuerpo negro de la plancheta y del TLD-100, expresada como:

donde a, b y c son parámetros que se ajustan durante el proceso de deconvolución de las curvas de brillo, y T es la temperatura.

El estudio presentado en este apéndice se realizó con la motivación principal de entender el efecto que tiene el variar el tipo de partícula y su energía sobre las segundas lecturas de dosímetros TLD-100 sensibilizados. Hasta en trabajos recientes, se le había dado relativamente poca importancia a las segundas lecturas de dosímetros irradiados, aunque sí se había observado una dependencia de la señal de la segunda lectura con la dosis recibida por el dosímetro. En esta tesis, además de este efecto, se observaron diferencias importantes en las segundas lecturas dependiendo de la energía y tipo de partícula utilizada. Por esto se decidió realizar un estudio para apoyar estas observaciones y tratar de entender el papel que juegan distintos tratamientos de horneado que se le dan a los cristales.

En la tabla II.1 se muestran las primeras y segundas lecturas de dosímetros TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones de 0.88, 2.94 y 4.27 MeV (1.1, 3.0 y 4.4 MeV nominales) a una misma fluencia. Podemos notar que la señal TL de las segundas lecturas está relacionada con la energía de la partícula y por lo tanto con la dosis depositada. Esta dependencia se observó de manera sistemática en todos los casos en que se realizó segunda lectura.

| Fluencia ¹ H, 0.88 MeV | | ¹ H, 2.9 | 4 MeV | ¹ H, 4.27 MeV | | |
|-----------------------------------|------|---------------------|-------|--------------------------|-------|------|
| <u>(cm²)</u> | 1ª | 2ª | 1ª | 2ª | 1ª | 2ª |
| 8.9×10 ⁸ | 4.82 | 0.66 | 34.90 | 2.60 | 54.45 | 2.74 |

Tabla II.1 Primeras y segundas lecturas en µC de TLD-100 sensibilizados e irradiados con protones.

II.2 Preparación de los dosímetros TLD-100

Todos los TLD-100 utilizados en este estudio recibieron el tratamiento térmico implementado en el laboratorio de dosimetría del IFUNAM que consiste de un horneado completo por 1 hora a 400°C seguido de un horneado por 2 horas a 100°C. Adicionalmente, se consideraron los siguientes tratamientos:

- (a) TLD-100 normales sin que hubieran recibido ningún tratamiento de sensibilización.
- (b) TLD-100 con "sensibilizado corto" (SC) que consiste en una irradiación a 1000 Gy de rayos gamma de ⁶⁰Co seguida de un horneado por una hora a 300°C.
- (c) TLD-100 con "sensibilizado largo" (SL). Este sensibilizado consiste de una irradiación a 1000 Gy de rayos gamma de ⁶⁰Co seguido por un horneado a 300°C durante diez horas.

Una vez definidos los diferentes tratamientos de sensibilización de los TLD-100 se procedió en algunos casos a irradiarlos con partículas α de ²⁴¹Am para entender el efecto que tiene el proceso completo sobre las curvas de brillo.

II.3 Irradiación de los dosímetros con partículas α

La irradiación de los dosímetros se efectuó con una fuente de α s de ²⁴¹Am. El cristal se colocó dentro de un nicho tallado en una pieza del lucita y la fuente se colocó sobre éste de tal forma que todas las irradiaciones se efectuaron de la misma manera. Los cristales en este arreglo reciben de la fuente 2.82×10^7 partículas por cm² por minuto, lo que equivale a una tasa de dosis macroscópica aproximada de 4.47 Gy min⁻¹ en el volumen expuesto. Las partículas α de energía nominal de 5.48 MeV inciden en el cristal con una energía efectiva de 5.3 MeV, después de haber perdido parte de su energía en el aire [Ga 96]. La vida media del ²⁴¹Am es de 432 años. Los dosímetros fueron irradiados durante 35.4 minutos, por lo
que recibieron una fluencia de 10^9 partículas cm⁻² y una dosis macroscópica de 158.2 Gy en sus 20 μ m de la cara expuesta a la fuente.

II.4 Lectura de los dosímetros

Los dosímetros fueron leídos en el equipo Harshaw 3500 del Instituto de Ciencias Nucleares (ICN) de la UNAM con la cara expuesta hacia el PMT. Todos los dosímetros fueron leídos a una tasa de calentamiento de 1°C s⁻¹. Algunos fueron leídos de temperatura ambiente hasta 265°C y otros hasta 400°C (que es el intervalo normalmente utilizado para la lectura de TLD-100 normales). Otros fueron leídos primero hasta 265°C y después hasta 400°C. En todos los casos, de cada primera lectura se obtuvo una segunda lectura. En la tabla II.2 (a la cual se hará referencia frecuentemente durante este apéndice) se muestra un resumen de todas las posibles combinaciones de tratamiento de sensibilización e irradiación con partículas α utilizadas en este trabajo, así como los valores y las distintas formas de lectura de los dosímetros. Algunas de las lecturas requirieron del uso de un filtro para proteger el tubo fotomultiplicador cuando las señales fueron mayores que 80 μ C. El factor de atenuación del filtro fue de aproximadamente 500 y ya está aplicado en las señales totales que se muestran en la tabla.

| Identificación del cristal | 75 | liorneado a 300 °C | OLS . | TTP (°C) | Filtro | 1º lectura | 2º lectura | Comentarios |
|-------------------------------|--|--|-------|-------------|--------|------------|------------|---|
| Also Also Also | No | No | Si | 0-400 | No | 2.23 μC | 20.14 nC | TLD-100 normales |
| , and A2 | Si | No | No | 0-400 | Sí | 962 μC | 12.80 μC | TLD-100 normales |
| B1 | Sí | 1 h | No | 0-265 | No | 49.99 nC | 47.78 nC | |
| B12 | | | | 0-400 | Sí | 189.65 μC | 10.43 μC | Después de haberlos leido de 0-265°C |
| B2 | Si | 1 h | No | 0-265 | No | 69.87 nC | 64.30 nC | |
| B22 | | | | 0-400 | Sí | 229.40 μC | 10.66 μC | Después de haberlos leido de 0-265°C |
| B3 | Si | 1 h | No | 0-400 | Sí | 211.55 μC | 14.05 μC | |
| CI 1 | Sí | 1 h | Sí | 0-265 | No | 4.45 μC | 412.70 nC | |
| C12 | | | | 0-400 | Sí | 205.35 μC | 7.34 μC | Después de haberlos leído de 0-265°C |
| C2 | Si | 1 h | Sí | 0-265 | No | 4.73 μC | 448.60 nC | |
| C22 | | | | 0-400 | Si | 229.75 μC | 7.30 μC | Después de haberlos leído de 0-265°C |
| C3 | Si | t h | Sí | 0-400 | Sí | 235.22 μC | 7.18 μC | |
| C4 | Si | 1 h | Sí | 0-400 | Sí | 201.15 μC | 7.15 μC | |
| - D1 | Si | 10 h | No | 0-265 | No | 5.25 nC | 4.36 nC | |
| D12 | | | | 0-400 | Sí | 16.02 μC | 5.66 µC | Después de haberlos leído de 0-265°C |
| D2 | Si | 10 h | No | 0-265 | No | 8.09 nC | 6.48 nC | |
| D22 | $ \frac{\partial g}{\partial x_{i}} = \frac{\partial g}{\partial x_{i}} \frac{\partial g}{\partial x_{i}}$ | | | 0-400 | Si | 22.56 μC | 5.69 μC | 1 |
| D3 | Si | 10 h | No | 0-400 | Sí | 18.44 μC | 5.46 µC | - |
| El Bi | SI SI | 10 h | Sí | 0-265 | No | 4.68 μC | 280.50 nC | |
| E12 | | A Construction of the second s | | 0-400 | Sí | 25.28 μC | 5.71 μC | Después de haberlos leido de 0-265°C |
| E2 | SI | 10 h | Si | 0-265 | No | 3.93 μC | 245.90 nC | : |
| E22 | | | | 0-400 | Sí | 30.17 μC | 5.68 µC | Después de haberlos leído de 0-265°C |
| E3 | Sí | 10 h | Sí | 0-400 | Sí | 39.94 μC | 5.99 μC | |
| E4 | Si | t0 h | Sí | 0-400 | Sí | 30,80 µC | 5.69 µC | |

Tabla II.2 Primeras y segundas lecturas del experimento de irradiaciones de TLD-100. Algunos tuvieron un sensibilizado corto (con 1 h a 300°C posterior a la irradiación con 1000 Gy de γ s) y otros sensibilizados largo (10 h a 300°C). Algunos fueron irradiados con α s después del sensibilizado. Los primeros dosímetros (A1 y A2) no tuvieron tratamiento de sensibilización. (TTP = intervalo de lectura).

II.5 Resultados

II.5.1 Irradiación de TLD-100 normales (sin sensibilizar) con α s y γ s (A1, A2 de la tabla II.2)

En la figura II.1 se muestran las curvas de brillo de dosímetros TLD-100, con horneado completo, sin tratamiento de sensibilización e irradiados con (a) α s a una fluencia de 10⁹ cm⁻² y (b) con 1000 Gy de γ s de ⁶⁰Co, leidos de 0 a 400°C a una tasa de calentamiento de 1°C s⁻¹. Se puede observar que las curvas de brillo presentan una estructura diferente tanto en su contribución de los picos de baja temperatura como en los de alta temperatura. El pico 4 es más prominente en la curva de γ s que en la de α s. En ambos casos el pico dosimétrico se encuentra alrededor de 225°C. Las intensidades son claramente muy diferentes dadas las distintas dosis utilizadas (158.2 Gy en el caso de las α s y 1000 Gy en el de γ s) y a los volúmenes irradiados que son totalmente diferentes. Se puede ver en la figura II.1 y en la tabla II.2 que las segundas lecturas representan sólo el 1% y 0.1% de las primeras lecturas para la irradiación con α s y γ s, respectivamente.



104



Figura II.1 Curvas de brillo de TLD-100 con horneado completo irradiados con (a) 158.2 Gy de α s de ²⁴¹Am y (b) 1000 Gy de γ s de ⁶⁰Co.

II.5.2 Sensibilizado corto vs. sensibilizado largo (sin irradiación con αs) leídos de 0-400°C (B3, D3 de la tabla II.2)

En la figura II.2 se muestran las curvas de brillo correspondientes a irradiaciones de TLD-100 con sensibilizado corto y largo, leídos de 0 a 400°C a 1°C s⁻¹ sin irradiación con α s. Como era de esperarse, aparentemente el proceso de sensibilización elimina la señal en la curva de brillo en el intervalo de lectura de 0 a 265°C. Sin embargo, hay que tomar en cuenta que la escala de la figura II.2 deberá seleccionarse en el intervalo adecuado en el que se espera registrar la curva de brillo para TLD-100 al ser irradiado con α s (para saber si hay una contribución neta proveniente de la irradiación con γ s). Esto se discutirá en la sección II.5.4. El SC permite la presencia de un pico muy prominente, aparentemente sin estructura, centrado alrededor de 365°C. El SL permite la presencia de un pico con una intensidad



mucho menor, aproximadamente por un factor de 10 con respecto al SC y centrado alrededor de 387°C. El pico prominente que aparece en el SC parece tener una caída similar (en magnitud y forma) a la curva de brillo correspondiente a una irradiación de 1000 Gy de γ s de TLD-100 normales (es decir, a la cola de la curva de brillo de la figura II.1a en una escala adecuada). Las segundas lecturas parecieran tener intensidades que dependen del valor de la señal TL de la primera lectura y en proporción mayor con respecto a la primera lectura (7% y 30% para el SC y SL, respectivamente).

II.5.3 TLD-100 sensibilizado (sin αs) leídos de 0-265° y después de 0-400° (B12, D12 de la tabla II.2)

En este caso el comportamiento de las curvas de brillo (no mostradas) es similar al caso anterior, es decir, hay un pico prominente alrededor de 365°C para el SC y otro menos prominente (por un factor de 10) para el SL centrado alrededor de 387°C. Esto implica que el procedimiento de leer primero el dosímetro de 0-265°C no cambia ni la estructura ni la posición de los picos. La magnitud de los picos pareciera ser menor en aproximadamente 10% que cuando se lee inicialmente (como primera lectura) de 0-400°C.





ll.5.4 TLD-100 sensibilizado corto vs. largo (sin α s) leídos de 0-265° (B1, B2, D1 y D2 de la tabla ll.2)

En la figura II.3 se muestra la curva de brillo de un TLD-100 con SC y SL. Las curvas muestran una componente creciente (similar a la señal de plancheta) que comienza alrededor de 200°C. Esta contribución es más importante en el SC que en el SL, por un factor de 6.25. El máximo de esta componente es del mismo orden de magnitud que el mostrado cuando se irradian TLD-100 normales con alfas (ver figura II.1), por lo que es de esperarse que esta señal se sumará a la de las α s cuando ocurra el sensibilizado e irradiación con α s completo. La contribución de la cola pareciera provenir de los picos de



alta temperatura, los cuales no se han borrado por completo con el procedimiento de horneado.





II. 5.5 TLD-100 con sensibilizado corto y largo e irradiados con αs, leídos de 0-400°C (C3, E3 de la tabla II.2)

En la figura II.4 se comparan las curvas de brillo de TLD-100 con y sin irradiar con partículas α y con (a) SC y (b) SL. La forma y posición de los picos de alta temperatura pareciera cambiar dependiendo del tratamiento de sensibilización utilizado (SC y SL). La posición actual de los picos es 333°C y 355°C, respectivamente. Sin la irradiación con α s estos picos estaban centrados en 365°C y 387°C, por lo que se observa un claro corrimiento de 32°C de los picos hacia temperaturas menores, ocasionado por la irradiación con α s.





Figura II.4 Curvas de brillo de TLD-100 con (a) SC y (b) SL sin αs (●) y con αs (O) leidos de 0 a 400°C.

| TE | SIS | CON |
|-------|-----|--------|
| FALLA | DE | OKIĜEN |

109

En la figura II.5 se muestran las mismas curvas de brillo de la figura II.4 con α s pero con la escala de la señal TL ajustada para observar de cerca la estructura inducida por la irradiación con estas partículas. Notamos en (a) que la estructura de la curva de brillo, de TLD-100 sensibilizado y con α s, a la derecha del pico 5, es una superposición de la señal de los picos de alta temperatura inducida por las α s más una contribución predominante de la señal inducida por las γ s proveniente del proceso del sensibilizado largo y en donde se observa la señal de las α s que predomina sobre las γ s hasta una temperatura de 300°C (que es la temperatura del horneado del proceso del sensibilización). En el caso en que los TLDs fueron irradiados con α s, en ambas figuras notamos que la señal de las γ s está recorrida hacia temperaturas más bajas, aproximadamente 25°C en (a) y 30°C en (b).

Si se sobreponen las curvas de brillo de TLD-100 sensibilizados e irradiados con α s leídos hasta 265°C con las mostradas en la figura II.5 se puede apreciar que las curvas coinciden perfectamente en cuanto a forma y posición (no mostrado en las figuras). Esto indica que la lectura hasta 400°C no modifica la estructura de la curva de brillo a temperaturas bajas.

II. 5.6 TLD-100 con sensibilizado corto y largo e irradiados con os, leídos de 0-265°C (C1, E1 de la tabla II.2)

En la figura II.6 se muestran las curvas de brillo de TLD-100 con SC y SL e irradiados con α s, leídos de 0-265°C. Ambas curvas de brillo muestran esencialmente la misma forma con el pico 5 centrado en 205°C. La forma de las curvas de los picos de altas temperaturas son distintas debido a la mayor contribución de la señal de las γ s en el SC. En el caso de SL, además, se nota una mayor contribución a la señal del pico 3, el cual se observa más prominente que en el caso de SC. Este resultado es evidente cuando se efectúa la deconvolución de estas curvas de brillo mostradas en la figura II.7. Las segundas lecturas son claramente dependientes del tipo de sensibilizado. Mientras que en el SC la segunda lectura fue de 413 nC (10% de la primera lectura) para el SL fue de 280 nC (6% de su

correspondiente primera lectura). La señal TL del pico 5 pareciera ser más intensa (por aproximadamente 7%) con el SC comparada con el sensibilizado largo.



Figura 11.5 Curvas de brillo de TLD-100 con (a) SC y (b) SL, sin αs (●) y con αs (O) leídos de 0 a 400°C en donde la escala de la señal TL ha sido modificada para observar el detalle de la curva de brillo resultado de la irradiación con αs.



111



Figura 11.6 Curvas de brillo de TLD-100 irradiados con αs y leídos de 0 a 265°C con (a) SC (•) y (b) SL (O). Se muestran primeras y segundas lecturas.



Figura II.7 Deconvolución de las curvas de brillo de TLD-100 mostradas en la figura II.6. (a) con SC y (b) SL e irradiadas con αs leídos de 0 a 265°C. Para convertir de canales a temperatura multiplicar por 1.325.



II.5.7 TLD-100 sensibilizados e irradiados con os leídos previamente de 0-265°C y después de 0 a 400°C (C12, E12 de la tabla II.2)

Se releyeron unos dosímetros con SC y SL, que habían sido leídos hasta 265°C, para alcanzar una temperatura de 400°C. Se observó en ambos casos que la señal de las alfas es prácticamente borrada con la primera lectura. En el caso del SL se alcanza a observar una pequeña estructura, como un pico centrado en 277°C, proveniente de la señal de las alfas que no se ve en el caso de SC, como se ve en la figura 11.8







II. 5.8 TLD-100 normal irradiado con œ vs. SC e irradiado con œs, leído de 0-265°C (A1, C1 de la tabla II.2)

En la figura II.9 se muestra la curva de brillo de TLD-100 irradiado con α s (figura II.1(a)) y la curva de brillo de un TLD-100 con SC e irradiado con α s. Se puede notar que el pico dosimétrico en el caso con SC es más prominente que en el caso del TLD normal (únicamente irradiado con α s). Realizando la deconvolución de las curvas de brillo la integral del pico 5 en el caso sensibilizado es un 57% mayor que en el caso del normal, lo que constituye el efecto buscado con este procedimiento. Se observa nuevamente que el pico 5 del TLD con SC está desplazado hacia temperaturas más bajas, unos 17°C comparado con la posición de este pico en el caso del TLD normal.



Figura 11.9 Curvas de brillo de TLD-100 irradiado con ∞s (△) y TLD-100 con sensibilizado corto e irradiado con ∞s (●)

En la tabla II.3 se muestran los parámetros de la deconvolución de la curva de brillo de TLD-100 con horneado completo e irradiado con partículas α de 5.3 MeV (A1 de la tabla

II.2) y en la figura II.10 se muestra la curva de brillo y su deconvolución en 9 picos. El signo negativo en algunos parámetros indica que se le permitió al programa CGCD ajustarlos.

| | | and the second second second second |
|-------------------------------|--------------------------------------|-------------------------------------|
| Pico | FWHM (°C) | Temp. (°C) |
| 3 | -51.14 | (-)163.8 |
| 4 | 32 | 198.6 |
| 5 | 26 | (-)222.0 |
| 6a | 30 | 240.8 |
| 6b | 36 | 265.2 |
| 7 | 36 | 292.6 |
| 8 | 36 | 318.8 |
| 9 | 36 | 344.8 |
| 10 | 36 | 372.0 |
| and the star of the foresteer | C. C.A. STRUCTURE HEAVEN THE SHOP OF | The manufacture of the transmission |

Tabla II.3 Parámetros de deconvolución de la curva de brillo de TLD-100 normal irradiado con partículas α de 5.3 MeV. El signo negativo indica que estos parámetros se propusieron y fueron ajustados por el programa.







II.6 Discusión y conclusiones

En este estudio se verificaron algunos resultados que ya se habían observado y además se obtuvieron algunos nuevos que requerirán de más experimentos para estudiarse con detalle. Se verificó que las segundas lecturas dependen de la dosis impartida al cristal y los tratamientos térmicos de sensibilización utilizados. El tipo de sensibilizado determina de manera importante la estructura de los picos de alta temperatura de los TLD-100 sensibilizados, irradiados con αs y leídos de 0-265°C. Esta estructura contiene información tanto de las vs del proceso de sensibilización como de las cs. El sensibilizado largo, permite por lo tanto observar la estructura de los picos de alta temperatura provenientes de la señal inducida por las α s, lo que no se observa en el sensibilizado corto. De esto se puede concluir que la cola de las curvas de brillo observadas en las irradiaciones con protones y carbonos en esta tesis es una superposición de la estructura de los picos de alta temperatura inducido por las PCPs y del remanente de la señal de las ys del proceso de sensibilizado. Un horneado largo disminuirá considerablemente esta contribución de las ys permitiendo observar la estructura de los picos de alta temperatura y por lo tanto realizar una deconvolución más "limpia" en donde el pico 5 no se vea afectado. Dado que la primera lectura de los TLD-100 sensibilizados e irradiados con os, leidos de 0-265°C deja un remanente (de α s y γ s) cuando son leídos de 265°C a 400°C, no es sorprendente que este remanente produzca una señal durante la segunda lectura del dosímetro dependiente de la fluencia.

En el caso de TLD-100 sensibilizados con γ s (sin α s) y leídos de 0 a 265°C, las curvas de brillo de estos mismos dosímetros, al ser leídos posteriormente hasta 400°C, son las mismas que si son leídos inicialmente hasta esta temperatura. Es decir, el leer a los dosímetros sensibilizados hasta una temperatura de 265°C no hace ningún efecto sobre la forma de la curva de brillo si son leídos después hasta 400°C.

En el caso de irradiaciones de TLD-100 sensibilizados e irradiados con α s, la señal de las α s es borrada casi en su totalidad con la primera lectura.

Se observó claramente que las irradiaciones con α s hacen que las curvas de brillo, en lecturas de 0-400°C, se desplacen hacia temperaturas más bajas. Lo mismo ocurre al comparar la posición del pico 5 de TLDs sensibilizados con la del TLD normal irradiado solamente con α s. Esto se puede ver claramente en la tabla II.4 donde se muestra un resumen de los parámetros de la deconvolución para pico 5 de A1 (TLD-100 normal irradiado con α s), C1 (TLD-100 con SC e irradiado con α s), y E1 (TLD-100 con SL e irradiado con α s). De estas observaciones es posible concluir que el proceso de sensibilizado de TLD-100 seguido de irradiación con PCPs produce un corrimiento no uniforme de la curva de brillo. Es decir, la magnitud en el corrimiento depende del pico bajo estudio. Más aun, para un mismo tipo de pico, el corrimiento también depende de la fluencia de PCPs a la que fue irradiado el dosímetro. Esto se puede ver claramente en la figura 6.1 en donde se muestra el corrimiento en la temperatura a la cual ocurre el máximo de pico 5 como función de la fluencia, tipo de partícula y energía.

| 1997 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - 1995 - | difference of the second | March 1 and 1 and 2 and 2 | | <u>ave</u> ra de la co |
|---|--------------------------|---------------------------|----------|-------------------------|
| TL. | D-100 | T _m (°C) | Integi | al (u.a.) |
| N | ormal SC SL | 222.0 205.5 205.0 | 15 13 | 563.8 528.4 501.5 |

Tabla II.4 Temperaturas a las que ocurre el máximo y la integral de TL de pico 5.

Este hecho hace suponer que el proceso de sensibilización induce una posible migración de electrones atrapados en niveles de energía profundos a trampas con niveles de energía menos profundos, tal que al ser calentado el cristal, el pico dosimétrico y el resto de la curva de brillo aparecen a temperaturas menores. Estas observaciones ya se habían reportado y tratado de explicar matemáticamente en un trabajo en el que se irradiaron TLD-100 a muy altas dosis de gammas de ⁶⁰Co (50,000 Gy) y leidos a 6°C s⁻¹ de temperatura ambiente hasta 400°C. Lecturas subsecuentes del cristal hasta 300°C (sin irradiaciones posteriores) mostraron curvas de brillo con estructura [Pe 78]. Aunque esta estructura de la curva de brillo es diferente a las curvas de brillo de este trabajo, el proceso físico que explica ambos experimentos podría ser similar.

Con estos resultados es evidente que se requiere de más estudios de las segundas lecturas, las cuales no se pueden despreciar en un análisis completo de la señal y estructura de las curvas de brillo en irradiaciones con PCPs. Así mismo, se podrá avanzar en el entendimiento de los procesos que ocurren durante la sensibilización de los cristales y los efectos que puedan tener sobre las lecturas.

Referencias

- At 75 Attix, F. H., Further considerations of the track interaction model for thermoluminescence in LiF (TLD-100), J. Appl. Phys., 46, 81 (1975).
- At 86 Attix, F. H., Introduction to radiological physics and radiation dosimetry, John Wiley & Sons, Inc., (1986).
- Av 98 Avilés-Mandujano, Patricia R., Respuesta termoluminiscente de LiF:Ti,Mg irradiado con protones de 1.5 y 3 MeV, Tesis de Maestría. Facultad de Química, División de estudios de posgrado, UNAM, (1998).
- Av 99 Avila, O., Gamboa-deBuen, I., Brandan M.E., Study of the energy deposition in LiF by heavy charged particle irradiation and its relation to the thermoluminescence efficiency of the material, J. Phys. D: Appl. Phys., 32, 1175-1181 (1999).
- Av 00 Avila, O., Depósito de energía en LiF ante irradiación con partículas cargadas pesadas y su relación con la respuesta termoluminiscente del material, Tesis Doctoral, Centro de Investigación Científica de Educación Superior, (2000).
- Be 99 Berger, M.J., Coursey, J.S., and Zucker, M.A. ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.2), http://physics.nist.gov/Star (1999).
- Br 02 Brandan, M.E., Gamboa-deBuen, I., Rodríguez-Villafuerte, M., Thermoluminescence induced by heavy charged particles, Rad. Prot. Dosim. 100 (1-4), 39-44 (2002).
- Ca 63 Cameron, J.R., Kenney, G.N., Radiat. Res. 19, 199 (1963).
- Ch 00 Chen, R., Leung, P.L., A model for dose-rate dependence of thermoluminescence intensity, J. Phys. D: Appl. Phys., **33**, 846-850 (2000).
- De 62 Dekker, J. Adrianus, Solid State Physics, Prentice-Hall, Inc., (1962).
- Ga 48 Garlick, G.F.J., Gibson, F., The Electron Trap Mechanism of Luminescence in Sulphide and Silicate Phosphors, Proc. Phys. Soc., 60, 574-590 (1948).

- Ga 01 Gamboa-deBuen, I., Avilés, P., Rodríguez-Villafuerte, M., Buenfil, A.E., Ruiz-Trejo, C., Brandan, M.E., Supralinear response and efficiency of LiF:Mg, Ti to 0.7, 1.5 and 3 MeV protons. Nucl. Inst. Meth. in Phys. Res. B. 183, 487-496 (2001).
- Ha 96 Hacyan., S., Relatividad especial para estudiantes de física, Fondo de Cultura Económica (1996).
- Ha 01 www.hmi.de/bereiche/SF/SF7/arbeitsg/erda/methode_en.html
- Ho 81 Horowitz, Y.S., The theoretical and microdosimetric basis of thermoluminescence and applications to dosimetry, Phys. Med. Biol., 26(4), 765-824 (1981).
- Ho 82 Horowitz, Y.S., Moscovitch, M., Dubi, A., Response curves for the thermoluminescence induced by alpha particles: interpretation using the track structure theory, Phys. Med. Biol. 27, 1325-1338 (1982).
- Ho 96 Horowitz, Y.S., Rosenkrantz, M. Mahajna, S., Yossian, D., The track interation model for alpha particle induced thermoluminescence supralinearity: dependence of the supralinearity on the vector properties of the alpha particle radiation field, J. Phys. D: Appl. Phys., 29, 205-217 (1996).
- Ho 01a Horowitz, Y.S., Theory of thermoluminescence gamma dose response; the unified interaction model, Nucl. Inst. Meth. in Phys. Reas. B. 184, 68-84 (2001).
- Ho 01b Horowitz, Y.S., Ávila, O., Rodríguez-Villafuerte, M., Theory of heavy charged particle response (efficiency and supralinearity in TL materials), Nucl. Inst. Meth. in Phys. Res. B. 184, 85-112 (2001).
- Ho 01c Horowitz, Y.S., Satinger, D., Oster, L. Issa, N., Brandan, M.E., Avila, O., Rodríguez-Villafuerte, M., Gamboa deBuen, I., Buenfil, A.E., Ruiz-Trejo, C. The extended track interaction model: supralinearity and saturation He-ion TL fluence response in sensitized TLD-100, Rad. Meas., **33**, 459-473 (2001).
- Ho 03 Horowitz Y.S., Oster, L., Biderman, S., Einav, Y., Localized transitions in the thermoluminescence of LiF:Mg,Ti: potential for nanoscale dosimetry. J. Phys. D: Appl. Phys., 36, 446-459 (2003).
- Is 02 Issa, N., Oster, L., Horowitz., Y.S., Optical absorption and sensitization dose response in LiF:Mg,Ti: Applications to the Unified Interaction Model predictions of thermoluminescence response, Rad. Prot. Dosim., **100**, 107-110 (2002).
- Kn 89 Knoll, Glenn F., Radiation Detection and Measurements, John Wiley & Sons, Inc., (1989).

- Mc 95 McKeever, S.W.S., Moscovitch, M., Townsend, P.D., Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses, Nuclear Technology Publishing, (1995).
- Me 02 Mercado-Uribe, Hilda J., Respuesta termoluminiscente de LiF:Mg,Ti irradiado con electrones de baja energía. Tesis doctoral, Instituto de Física, Universidad de Guanajuato, (2002).
- Mo 82 Montenegro, E.C., Cruz, S.A., Vargas-Aburto, C., A universal equation for the electronic stopping of ions in solids, Phys. Lett. **92A**, 195-202 (1982).
- Mo 83 Moscovitch, M., Horowitz, Y.S., Oduko, J., LiF thermoluminescence dosimetry via computarised first order kinetics glow curve analysis, Rad. Prot. Dosim., 6 (1-4), 157-159 (1983).
- Mo 86 Moscovitch , M., Horowitz, Y.S. Microdosimetric Track Interaction Model Applied to Alpha Particle Induced Supralinearity and Linearity in LiF:Mg, Ti, Rad. Prot. Dosim., 17(1-4), 487-491 (1986).
- Pe 78 Petridou, CH., Christodoulides, C., Charalambous, S., Non-radiation induced thermoluminescence in pre-irradiated LiF (TLD-100), Nucl. Inst. Meth., 150, 247-252 (1978).
- Pu 85 Purcell, E.M., Electricity and Magnetism, Berkeley Physics Course volume 2, McGraw Hill, (1985).
- Ra 45 Randall, J. T., Wilkins M. H. F., Phosphorescence and electron traps, the study of trap distributions, Proc. Roy. Soc. A, 184, 366 (1945).
- Ri 01 Rickards-Campbell, J., La física de radiaciones en materia, UNAM, (2001).
- Ro 99 Rodriguez-Villafuerte, M., A Monte Carlo approach to the track interaction model to explain supralinearity in the thermoluminescence response. Nucl. Inst. Meth. B, 152, 105-144 (1999).
- Ro 00 Rodriguez-Villafuerte, M., Buenfil, A.E., Gamboa-deBuen I., Ruiz-Trejo, C., Brandan, M.E., Yossian, D., Satinger, D., Horowitz, Y.S., Study of TL response of LiF:Mg,Ti to 3 and 7.5 MeV helium ions: Measurements and interpretation in terms of the track interaction model, Nucl. Inst. Meth. B, 160, 377-386 (2002).
- Ro 02 Rodríguez-Villafuerte, M., Ávila, O., The TL-fluence response to heavy charged particles using the track interaction model and track structure information. Rad. Prot. Dosim., **100** (1-4), 99-102 (2002).
- Sr 00 Página Web: www.srim.org

Ta 97 Taylor, J.R., An introduction to Error Analysis, the study of uncertainties in physical measurements, University Science Books, (1997).

Tu 95 Turner, J.E., Atoms, Radiation and Radiation Protection, John Wiley & Sons, Inc., (1995).