



Instituto Politécnico Nacional



Centro de Investigación en Ciencia Aplicada y Tecnología  
Avanzada Unidad Legaria.

Síntesis y Caracterización de  $\text{LiF:Mg,Ti}$  para  
Dosimetría de Radiaciones Ionizantes

Tesis para obtener el grado de Maestría en Tecnología  
Avanzada

Presenta:

Lic. Ivonne Berenice Lozano Rojas

Directores de Tesis:

Dr. Pedro Ramón González Martínez  
Dr. Teodoro Rivera Montalvo

Diciembre del 2011



**INSTITUTO POLITÉCNICO NACIONAL**  
**SECRETARÍA DE INVESTIGACIÓN Y POSGRADO**

SIP-14

*ACTA DE REVISIÓN DE TESIS*

En la Ciudad de México, D.F. siendo las 11:00 horas del día 25 del mes de Noviembre del 2011 se reunieron los miembros de la Comisión Revisora de Tesis designada por el Colegio de Profesores de Estudios de Posgrado e Investigación de CICATA-LEGARIA para examinar la tesis titulada:

**Síntesis y caracterización de LiF:Mg,Ti para dosimetría de radiaciones ionizantes**

Presentada por el alumno:

**LOZANO**

Apellido paterno

**ROJAS**

Apellido materno

**IVONNE BERENICE**

Nombre(s)

Con registro:

B	0	9	2	0	1	1
---	---	---	---	---	---	---

aspirante de: **MAESTRÍA EN TECNOLOGÍA AVANZADA**

Después de intercambiar opiniones los miembros de la Comisión manifestaron **SU APROBACIÓN DE LA TESIS**, en virtud de que satisface los requisitos señalados por las disposiciones reglamentarias vigentes.

**LA COMISIÓN REVISORA**

Directores de tesis

DR. TEODORO RIVERA MONTALVO

DR. PEDRO RAMÓN GONZÁLEZ  
MARTÍNEZ

DR. JOSÉ GUZMÁN MENDOZA

DR. JOSÉ ANTONIO CALDERÓN  
ARENAS

DR. JUAN AZORÍN NIETO

EL PRESIDENTE DEL COLEGIO

DR. JOSÉ ANTONIO IRÁN DÍAZ GONZÁLEZ



FACULTAD DE INVESTIGACION EN CIENCIAS  
DE TECNOLOGÍA AVANZADA  
DEL IPN



**INSTITUTO POLITÉCNICO NACIONAL**  
**SECRETARÍA DE INVESTIGACIÓN Y POSGRADO**

**CARTA CESIÓN DE DERECHOS**

En la Ciudad de México, D.F. el día 5 del mes Diciembre del año 2011, el (la) que suscribe Ivonne Berenice Lozano Rojas alumna del Programa de MAESTRÍA EN TECNOLOGÍA AVANZADA con número de registro B092011, adscrito a CICATA-LEGARIA, manifiesta que es autor (a) intelectual del presente trabajo de Tesis bajo la dirección de los Dr. TEODORO RIVERA MONTALVO y Dr. PEDRO RÁMON GONZÁLEZ MARTÍNEZ y cede los derechos del trabajo intitulado Síntesis y caracterización de LiF:Mg,Ti para dosimetría de radiaciones ionizantes, al Instituto Politécnico Nacional para su difusión, con fines académicos y de investigación.

Los usuarios de la información no deben reproducir el contenido textual, gráficas o datos del trabajo sin el permiso expreso del autor y/o director del trabajo. Este puede ser obtenido escribiendo a la siguiente dirección ivonne.berenice@gmail.com. Si el permiso se otorga, el usuario deberá dar el agradecimiento correspondiente y citar la fuente del mismo.

  
\_\_\_\_\_  
Ivonne Berenice Lozano Rojas  
Nombre y firma

INDICE	i
Resumen	iii
Abstract	v
Introducción	vii
Pregunta Científica	ix
Hipótesis	ix
Objetivos	ix
INDICE DE TABLAS	x
INDICE DE FIGURAS	xi
CAPITULO I: ASPECTOS TEÓRICOS	1
1.1. Radiaciones	2
1.1.1. Clasificación de la radiación	2
1.1.2. Tipos de radiación ionizante	3
1.1.2.1. Radiación ionizante directa	3
1.1.2.2. Radiación ionizante indirecta	4
1.2. Luminiscencia	6
1.2.1. Fenómenos luminiscentes y métodos de excitación	6
1.2.2. Termoluminiscencia	7
1.2.3. Mecanismos del fenómeno de termoluminiscencia	7
1.3. Dosimetría por Termoluminiscencia	8
1.3.1. Características dosimétricas de los materiales TL	8
1.3.2. Sistema de dosimetría termoluminiscente	12
1.4. Interacción de la Radiación con la Materia y Métodos para Medir la Dosis	14
1.4.1. Interacciones con fotones	15
1.4.2. Magnitudes que describen la interacción de la radiación ionizante con la materia	15
1.4.3. Calibración de los dosímetros TL	16
1.5. Cinética del Fenómeno de Termoluminiscencia	17
1.5.1. Análisis por deconvolución	21
CAPITULO II: DESARROLLO EXPERIMENTAL	25
2.1. Materiales y Fuentes de Radiación	26
2.1.1. Materiales	26
2.1.2. Equipo y fuentes de radiación	26
2.2. Método de Preparación del Fluoruro de Litio con Distintos Activadores	27
2.3. Caracterización Morfológica y Estructural	28

2.4. Caracterización Dosimétrica	29
2.4.1. Optimización del tratamiento térmico de borrado	29
2.4.2. Sensibilidad	29
2.4.3. Respuesta en función de la concentración del dopante	30
2.4.4. Elaboración de pastillas	30
2.4.5. Homogenización por lotes de los dosímetros LiF:Mg,Ti+PTFE	31
2.4.6. Reproducibilidad de la respuesta TL	31
2.4.7. Respuesta en función de la dosis absorbida	32
2.4.8. Umbral de detección	33
2.4.9. Desvanecimiento de la información TL (fading)	33
2.4.10. Efecto de la humedad en los dosímetros	33
2.5 Determinación de los Parámetros Cinéticos de la Curva TL por Deconvolución	34
 CAPITULO III: RESULTADOS	 35
3.1. Caracterización Morfológica y Estructural	36
3.2. Características Dosimétricas	37
3.2.1. Respuesta en función de la concentración del dopante	37
3.2.2. Optimización del tratamiento térmico	38
3.2.3. Sensibilidad	41
3.2.4. Homogenización por lotes de los dosímetros LiF:Mg,Ti+PTFE	42
3.2.5. Reproducibilidad de la respuesta TL	45
3.2.6. Respuesta en función de la dosis	48
3.2.7. Umbral de detección	51
3.2.8. Desvanecimiento de la información TL (fading)	53
3.2.9. Efecto de la humedad en los dosímetros	55
3.3. Determinación de los Parámetros Cinéticos de la Curva TL por Deconvolución	56
 CAPITULO IV: DISCUSION DE RESULTADOS	 61
CONCLUSIONES	65
TRABAJOS A FUTURO	66
REFERENCIAS BIBLIOGRAFICAS	67
APENDICE A	69

# Resumen

La emisión de luz térmicamente estimulada, conocida simplemente como termoluminiscencia (TL), es la propiedad física que tienen algunos sólidos cristalinos de emitir luz después de haber sido irradiados, donde la cantidad de luz emitida es proporcional a la dosis recibida, siendo este fenómeno, el fundamento de la dosimetría de las radiaciones ionizantes. Los materiales termoluminiscentes (TL) nos permiten cuantificar, de manera indirecta, la energía depositada por la radiación ionizante en un medio determinado.

Entre los diferentes materiales termoluminiscentes (TL) el LiF:Mg,Ti es el más empleado para fines dosimétricos debido a su equivalencia con el tejido, posee un número atómico efectivo de 8.14, el dosímetro comercial de este tipo más conocido es el TLD-100. Sin embargo, debido a que este dosímetro es de importación, resulta inaccesible para muchos grupos de investigación e instituciones hospitalarias. La finalidad de este trabajo es la optimización de su síntesis, así como de su caracterización dosimétrica, para que en un momento dado, pueda sustituir a los dosímetros de importación.

La síntesis de LiF:Mg,Ti es un proceso muy delicado, ya que uno de sus reactivos es el fluoruro de litio que es altamente corrosivo. En este trabajo la síntesis del LiF:Mg,Ti se realizó por el método de sustancia fundida, se usó LiF de grado analítico y se incorporaron los activadores de magnesio (Mg) y titanio (Ti) en soluciones acuosas. Para la optimización en el manejo del material TL se elaboraron dosímetros en forma de pastillas, utilizando teflón (PTFE) como material aglutinante, en una proporción de 2:3.

Primero se hizo una preparación de LiF, incorporando únicamente Mg como dopante, en una concentración de 400 partes por millón (ppm). Posteriormente, se hicieron preparaciones incorporando el Ti con concentraciones desde 15 hasta 120 ppm, manteniendo fija la concentración de Mg (400 ppm).

Las pruebas de caracterización morfológica y estructural del material TL fueron realizadas mediante las técnicas de microscopia electrónica de barrido (MEB) y difracción de rayos X (DRX).

La concentración óptima del Ti, se determinó en función de la sensibilidad del material TL a la dosis de radiación. El material preparado con 60 ppm de Ti presentó la sensibilidad más alta. Sin embargo, el resto de las preparaciones cumplen también con los requerimientos recomendados por los organismos internacionales para ser empleados en dosimetría de radiaciones ionizantes. Para la caracterización dosimétrica se emplearon las muestras con 400 ppm de Mg, 400 ppm Mg y 30 ppm Ti, 400 ppm Mg y 60 ppm Ti.

El LiF:Mg presentó su pico dosimétrico a una temperatura de 240°C, mientras que el LiF:Mg,Ti (30 ppm Ti y 60 ppm Ti) mostraron el pico dosimétrico a una temperatura de 220°C y 222 °C respectivamente.

Se establece como tratamiento estándar de borrado para LiF: Mg, Ti en polvo 400°C por 1 hora seguido de 100 °C por 2 horas. Mientras que para los dosímetros en forma de pastilla de LiF:Mg,Ti+PTFE, se consideró como tratamiento estándar de borrado, 350°C por 30 minutos seguido de 100°C por 2 horas.

La respuesta TL es reproducible para todos los lotes de dosímetros, cumpliendo ampliamente con la norma internacional, que recomienda una  $DS \pm 7.5\%$ , para los dosímetros LiF:Mg+PTFE la reproducibilidad fue de 2.28%, mientras que los dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE con 30 y 60 ppm Ti, la reproducibilidad fue de 2.27% y 1.88% respectivamente [1].

El umbral de detección de los dosímetros para el LiF:Mg+PTFE fue de 0.830 mGy, mientras que para LiF:Mg,Ti+PTFE con 30 y 60 ppm Ti, el umbral fue 0.046 y 0.059 mGy respectivamente.

El estudio de la respuesta TL como función de la dosis, de los materiales preparados, se llevó a cabo con radiación gamma de  $^{60}\text{Co}$ , en el intervalo de dosis entre  $1 \times 10^{-4}$  y  $1 \times 10^3$  Gy. La respuesta TL en función de la dosis para los dosímetros de LiF:Mg+PTFE, fue lineal en el intervalo de 0.0025 y 50 Gy. La respuesta TL en función de la dosis para los dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE, con 400 ppm Mg, 30 ppm Ti, presentó linealidad en el intervalo de 0.0025 y 100 Gy. La respuesta TL en función de la dosis para los dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE con 400 ppm Mg, 60 ppm Ti, presentó linealidad en el intervalo de 0.0025 y 50 Gy. El TLD-100 presentó linealidad en el intervalo de dosis entre 0.001 y 10 Gy.

El LiF:Mg presenta un desvanecimiento del 3% en dos meses, el LiF:Mg,Ti (400 ppm Mg, 60 ppm Ti) se presentó una pérdida de información del 2% en tres meses.

La deconvolución con muestra en forma de polvo la curva TL mostró que el pico dosimétrico del LiF:Mg se presenta a 240°C, con una energía de activación de 2.1 eV, con una cinética de orden general. El pico dosimétrico del LiF:Mg,Ti (60 ppm de Ti) se presenta a 222°C, con una energía de activación de 2.36 eV, con una cinética de orden general. Los resultados obtenidos fueron comparados con los del TLD-100.

Los materiales TL preparados en este trabajo no sufren cambios apreciables por la influencia de las condiciones ambientales.

# Abstract

The emission of light thermally stimulated, simply known as Thermoluminescence (TL), is the physical property that some crystalline solids have to emitting light after they have been irradiated, where the amount of emitted light is proportional to the dose received, being this phenomenon, the basis of ionizing radiation dosimetry. The thermoluminescence materials (TL) allow us to measure, in an indirect way, the deposited energy by the ionizing radiation in a specific medium.

Among the different thermoluminescence materials (TL), the LiF:Mg, Ti is the most used for dosimetric purposes, because its equivalence to the human tissue, it has an effective atomic number of 8.14, the best known commercial dosimeter of this kind is the TLD-100. However, because this dosimeter is an imported product, is quite expensive for many research groups and hospitals. The purpose of this work is the optimization of its synthesis, as the dosimetric characterization, so it can replace the imported dosimeters.

The synthesis of LiF:Mg,Ti is a very delicate process, since one of the reagents, the lithium fluoride is highly corrosive. In this work the synthesis of the LiF:Mg,Ti was done by the molten substance method, it was used LiF of analytical grade and it was incorporated the magnesium (Mg) and titanium (Ti) activators in aqueous solution. For to optimize the handle of the material TL, we elaborated pellets, and we used Teflon (PTFE) as agglutinant material, in a 2:3 proportion.

First we prepared the LiF, incorporating just Mg as dopant with a concentration of 400 parts per million (ppm). Then, we incorporate the Ti with concentrations from 15 to 120ppm keeping fixed the concentration of Mg (400ppm).

The morphologic and structural characterizations of the TL material were made by scanning electron microscopy (SEM) and X ray diffraction.

The optimal concentration of Ti, was determined as a function of the radiation dose sensibility of the TL material. The material prepared with 60 ppm of the Ti showed a higher sensibility. However, also the rest of the preparations have the requirements recommended by international agencies to be used in ionizing radiation dosimetry. For the dosimetric characterization we used sample with 400 ppm of Mg, 400 ppm Mg and 30 ppm Ti, 400 ppm Mg and 60 ppm Ti.

The LiF:Mg showed its dosimetric peak at 240°C, while the LiF:Mg,Ti (30 ppm and 60 ppm Ti) showed their dosimetric peak at 220°C and 222°C respectively.

It was established the post-irradiation annealing for the LiF:Mg,Ti in powder 400°C during 1hr followed by two hours at 100°C. For pellets dosimeters of LiF:Mg,Ti+PTFE, it was considered as standard annealing treatment, 350°C during 30 minutes followed by 2 hours at 100°C.

The TL response is reproducible for all the dosimeters, satisfying with the international norm, that recommends a  $DS \pm 7.5\%$ , for the LiF:Mg+PTFE dosimeters the reproducibility was 2.28%, and for the LiF:Mg,Ti+PTFE with 30 and 60 ppm Ti dosimeters, the reproducibility was 2.27% and 1.88% respectively.

The lower limit of detection of the LiF:Mg+PTFE dosimeters was 0.830 mGy, while for the LiF:Mg,Ti+PTFE with 30 and 60 ppm Ti, the lower detection limit was 0.046 and 0.059 mGy respectively. The study of the TL response as a function of the dose, of the materials prepared, was done with  $^{60}\text{Co}$  gamma radiation, in the interval dose between  $1 \times 10^{-4}$  y  $1 \times 10^3$  Gy. The TL response as dose function for the LiF:Mg+PTFE dosimeters, was lineal in the interval from 0.0025 to 50 Gy.

The response of the TL as a function of the dose, for the LiF:Mg,Ti+PTFE, with 400 ppm Mg, 30 ppm Ti, showed linearity in the interval from 0.0025 to 50 Gy. The TL response as a function of the dose for the LiF:Mg,Ti+PTFE con 400 ppm Mg, 60 ppm Ti dosimeters showed linearity in the interval from 0.0025 to 50. The TL-100 showed linearity in the interval of dose from 0.001 to 10 Gy

The LiF:Mg showed a fading of 3% in two months, the LiF:Mg,Ti (400 ppm Mg, 60 ppm Ti) showed a lost of information of 2% in three months.

The deconvolution with a powder sample applied to the glow curve obtained the dosimetry peak of the LiF:Mg,Ti, it is presented to  $240^\circ\text{C}$  with an activation energy of 2.1 eV with a general order kinetics. The dosimetry peak of LiF:Mg,Ti (60 ppm of Ti) assumed to  $222^\circ\text{C}$  with an activation energy of 2.36 eV with a general order kinetics. The results were compared with those of TLD-100.

The TL materials prepared in this work do not suffer significant changes by the influence of the environmental conditions.

# Introducción

La emisión de luz térmicamente estimulada de un material previamente irradiado, es el fenómeno conocido como termoluminiscencia (TL) y es el fundamento para el desarrollo de la dosimetría de radiaciones ionizantes.

Las aplicaciones del fenómeno de termoluminiscencia comenzaron en la universidad de Wisconsin, por Daniels [2]. Quien propuso dicho fenómeno para dosimetría de radiaciones, siendo el pionero en estudiar el fluoruro de litio (LiF), que más tarde fue usado en dosimetría *in vivo* [3]. Posteriormente Cameron [4] reanuda su investigación, incorporándole impurezas de magnesio (Mg) y titanio (Ti) a la matriz de LiF, llegando a patentar el dosímetro comercial conocido como (TLD-100). [5]

A lo largo de los años se han generado investigaciones sobre materiales dosimétricos, los cuales se emplean en determinadas áreas, dependiendo del intervalo de dosis que se utilice, de aquí la importancia de clasificar los dosímetros termoluminiscentes en dos tipos: en primer lugar tenemos los que son equivalentes al tejido humano, prácticamente con respuesta independiente de la energía, pero baja sensibilidad como el LiF:Mg,Ti y los que tiene alta sensibilidad pero no son equivalentes al tejido humano, sin embargo ambos dosímetros han mostrado características favorables para aplicaciones ambientales, personales y medicas.

Cabe señalar que los activadores (Mg,Ti) son impurezas en el cristal que provocan un marcado aumento en la eficiencia del fenómeno TL. [6] Al fluoruro de litio se le han introducido pequeñas cantidades de  $MgCl_2$  se dice que esta activado con magnesio (400 ppm Mg), la finalidad de este trabajo es analizar que papel juega el Ti en las propiedades TL de LiF:Mg,Ti.

Es importante señalar que el proceso de síntesis, es un factor fundamental para la elaboración de nuevos materiales TL, en el presente trabajo se reporta un método más noble con el medio ambiente que otras síntesis del LiF, basados en el método de precipitación al realizar la reacción cloruro de litio (LiCl) con fluoruro de amonio ( $NH_4F$ ) [7]. La Patente de Harshaw describe dos métodos de preparación para LiF:Mg,Ti: método de solificación, método de cristal simple creciendo el cristal por el método de Czochralski [8].

Algunos autores comentan que la síntesis del LiF: Mg, Ti no se ha encontrado una rutina satisfactoria para la preparación del fosforo, presentando problemas asociados con la reproducibilidad y homogenización del lote [7] de aquí radica la importancia de realizar una síntesis de LiF:Mg,Ti que presente eficiencia en el fenómeno TL.

El objetivo de este trabajo es el de sintetizar el LiF: Mg, Ti, manteniendo constante la concentración del activador Mg y modificar las concentraciones del coactivador Ti para optimizar sus características Termoluminiscentes, que permitan su uso en dosimetría de radiaciones ionizantes, sustituyendo en un momento dado a los dosímetros de importación.

La tesis se divide en cuatro capítulos, en el capítulo 1 se muestran los aspectos teóricos del fenómeno de Termoluminiscencia (TL).

En el capítulo 2 se describe la síntesis de los materiales (TL) y las características dosimétricas asociadas como son: sensibilidad, homogenización, reproducibilidad de la respuesta TL, umbral de detección, desvanecimiento de la señal TL, respuesta TL en función de la dosis de radiación gamma. Finalmente, se determinaron los parámetros cinéticos del material por el método de deconvolución de la curva TL.

En el capítulo 3 se presentan los resultados obtenidos de las características que deben de tener los materiales TL y en el capítulo 4 se hace una discusión y análisis de los resultados.

# *Pregunta Científica*

¿Puede la concentración de Ti como dopante modificar las propiedades dosimétricas de un material Termoluminiscente (TL), para medir la energía depositada por la radiación?

## *Hipótesis*

La variación de la concentración de Ti en la estructura del LiF:Mg,Ti, logrará mejorar las características dosimétricas del material Termoluminiscente.

## *Objetivo General*

Sintetizar y mejorar las propiedades termoluminiscentes del LiF:Mg,Ti para su uso en dosimetría la dosimetría de las radiaciones ionizantes.

## *Objetivos Particulares*

- ✓ Sintetizar el LiF:Mg,Ti con diferentes concentraciones de los dopantes de Mg y Ti.
- ✓ Caracterizar Morfológica y Estructuralmente a los materiales TL sintetizados.
- ✓ Determinar las características Termoluminiscentes de los materiales obtenidos.
- ✓ Determinar los parámetros cinéticos del LiF dopado con diferentes concentraciones de Mg y Ti por el método de deconvolución de las curva TL.

# INDICE DE TABLAS

<b>Tabla 1.1.</b> Tipos de fenómenos luminiscentes observados en diversos materiales.	6
<b>Tabla 2.1.</b> Fuentes de radiación gamma e intervalos de dosis utilizadas en la experimentación.	32
<b>Tabla 3.1.</b> Comparación de la respuesta TL para diferentes concentraciones de Ti.	38
<b>Tabla 3.2.</b> Diferentes tratamientos térmicos del LiF:Mg,Ti	38
<b>Tabla 3.3.</b> Tratamientos térmicos complementarios en el LiF:Mg,Ti y TLD-100.	39
<b>Tabla 3.4.</b> Sensibilidad de las diferentes concentraciones del LiF:Mg,Ti y LiF:Mg.	42
<b>Tabla 3.5.</b> Intervalo de respuesta TL y frecuencia LiF:Mg+PTFE (400 ppm Mg).	42
<b>Tabla 3.6.</b> Intervalo de respuesta TL y frecuencia LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti).	43
<b>Tabla 3.7.</b> Intervalo de respuesta TL y frecuencia LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti).	44
<b>Tabla 3.8.</b> Reproducibilidad de la respuesta TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (0, 30 y 60 ppm Ti).	46
<b>Tabla 3.9.</b> Umbral de detección del LiF:Mg+PTFE.	51
<b>Tabla 3.10.</b> Umbral de detección del LiF:Mg,Ti+PTFE (400ppm de Mg, 30 ppm de Ti).	52
<b>Tabla 3.11.</b> Umbral de detección del LiF:Mg,Ti+PTFE (400ppm de Mg, 60 ppm de Ti).	52
<b>Tabla 3.12.</b> Desvanecimiento de la información TL del LiF:Mg.	53
<b>Tabla 3.13.</b> Desvanecimiento de la información TL del LiF:Mg,Ti (400ppm de Mg, 30 ppm de Ti).	53
<b>Tabla 3.14.</b> Desvanecimiento de la información TL del LiF:Mg,Ti (60 ppm Ti).	54
<b>Tabla 3.15.</b> Promedio de las masa obtenidas durante la prueba de efecto de la humedad.	55
<b>Tabla 3.16.</b> Efectos de la humedad en el LiF:Mg+PTFE y LiF:Mg,Ti+PTFE (30 y 60 ppm de Ti).	55
<b>Tabla 3.17.</b> Resultados de la deconvolución aplicada al espectro TL del LiF:Mg.	56
<b>Tabla 3.18.</b> Resultados de la deconvolución aplicada al espectro TL del LiF:Mg,Ti (60 ppm de Ti).	57
<b>Tabla 3.19.</b> Resultados de la deconvolución aplicada al espectro TLD-100.	58

# INDICE DE FIGURAS

<b>Figura 1.1.</b> Espectro electromagnetico.	4
<b>Figura 1.2.</b> Modelos de bandas y emisión termoluminiscente: ● electrón, o hueco.	7
<b>Figura 1.3.</b> Respuesta TL en función de la dosis absorbida.	10
<b>Figura 1.4.</b> Diagrama de un lector TL convencional.	14
<b>Figura 2.1.</b> Balanza usada para obtener la masa de los dosímetros de LiF:Mg,Ti.	27
<b>Figura 2.2.</b> Tratamiento térmico en LiF:Mg,Ti.	28
<b>Figura 2.3.</b> Matraz de ágata con LiF:Mg,Ti en polvo.	28
<b>Figura 2.4.</b> Horno eléctrico usado para los tratamientos térmicos de borrado.	29
<b>Figura 2.5.</b> Dosímetros en forma de pastillas de LiF:Mg,Ti.	30
<b>Figura 2.6.</b> Detector Harshaw 4000 utilizado para tomar la lectura de los dosímetros.	31
<b>Figura 2.7.</b> Porta dosímetro de plexiglás.	33
<b>Figura 3.1.</b> Micrografía de LiF:Mg,Ti (400 ppm de Mg, 30 ppm de Ti).	36
<b>Figura 3.2.</b> Difractograma de LiF:Mg,Ti (400 ppm de Mg, 30 ppm de Ti).	37
<b>Figura 3.3.</b> Intensidad TL para las diferentes concentraciones.	37
<b>Figura 3.4.</b> Intensidad TL con distintos tratamientos térmicos de LiF:Mg,Ti.	39
<b>Figura 3.5.</b> Tratamientos térmicos adicionales de LiF:Mg,Ti.	40
<b>Figura 3.6.</b> Curva TL del LiF:Mg.	40
<b>Figura 3.7.</b> Curvas TL del LiF:Mg,Ti (60 ppm de Ti) y TLD-100.	41
<b>Figura 3.8.</b> Curvas TL de las diferentes concentraciones del LiF:Mg,Ti.	42
<b>Figura 3.9.</b> Histograma de las pastillas del LiF:Mg+PTFE.	43
<b>Figura 3.10.</b> Histograma de las pastillas del LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti).	44
<b>Figura 3.11.</b> Histograma de las pastillas del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti).	45
<b>Figura 3.12.</b> Reproducibilidad de LiF:Mg+PTFE.	47
<b>Figura 3.13.</b> Reproducibilidad de LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti).	47
<b>Figura 3.14.</b> Reproducibilidad de LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti).	48
<b>Figura 3.15.</b> Respuesta TL del LiF:Mg+PTFE en función de la dosis de radiación gamma de $^{137}\text{Cs}$ y $^{60}\text{Co}$ .	48
<b>Figura 3.16.</b> Intervalo de linealidad del LiF:Mg+PTFE irradiado con gammas de $^{137}\text{Cs}$ y $^{60}\text{Co}$ .	49
<b>Figura 3.17.</b> Respuesta TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de $^{137}\text{Cs}$ y $^{60}\text{Co}$ .	49
<b>Figura 3.18.</b> Intervalo de linealidad TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de $^{137}\text{Cs}$ y $^{60}\text{Co}$ .	50
<b>Figura 3.19.</b> Respuesta TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de $^{137}\text{Cs}$ y $^{60}\text{Co}$ .	50
<b>Figura 3.20.</b> Intervalo de linealidad del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de $^{137}\text{Cs}$ y $^{60}\text{Co}$ .	51
<b>Figura 3.21.</b> Desvanecimiento del LiF:Mg.	53
<b>Figura 3.22.</b> Desvanecimiento del LiF:Mg,Ti (30 ppm de Ti).	54
<b>Figura 3.23.</b> Desvanecimiento del LiF:Mg,Ti (60 ppm de Ti).	55
<b>Figura 3.24.</b> Deconvolucion de la curva TL del LiF:Mg a) Curva TL completa, b) Picos de baja temperatura (FOM=0.55).	57
<b>Figura 3.25.</b> Deconvolucion de la curva TL del LiF:Mg,Ti (60 ppm de Ti) con FOM=0.47.	58
<b>Figura 3.26.</b> Deconvolucion de la curva TL del TLD-100 (FOM=0.56).	59

# CAPÍTULO I: ASPECTOS TEÓRICOS

## 1.1. Radiaciones.

A lo largo de los años, la física moderna describe con toda claridad la naturaleza ondulatoria de la materia, esta naturaleza ondulatoria se presenta como dualidad onda-partícula. A veces se comporta más como onda, a veces más como partícula. Tomemos como ejemplo las ondas electromagnéticas con longitud de onda grandes (menor energía), éstas son las ondas de radio o televisión y sus efectos se dejan sentir en objetos grandes, como antenas. Pero a medida que la longitud de onda disminuye (progresivamente en luz infrarroja, luz visible, rayos ultravioleta, rayos X y rayos  $\gamma$ ) sus efectos están más localizados y adquieren propiedades de partículas. A continuación se presentan dos definiciones formales del término radiación el cual está relacionado con este tipo de ondas electromagnéticas.

*Radiación:*

- Es la emisión y propagación de energía a través del espacio o en un medio material en forma de ondas electromagnéticas. [9]
- Es el transporte de energía a través de corpúsculos con masa en reposo conocidas. [10]

### 1.1.1. Clasificación de la radiación.

Sabemos que la radiación al interactuar con la materia produce ionización, excitación, desplazamiento atómico y/o cambios químicos, en el siguiente recuadro se muestra la clasificación de la radiación en ionizante y no ionizante:



La característica básica de la radiación ionizante es que posee la energía suficiente para producir ionización en un sólido cristalino, por ejemplo es capaz de desprender a los electrones del átomo, también pueden romper enlaces químicos e incluso interactuar con el núcleo atómico (rayos  $\gamma$  y electrones de alta energía). Una vez ionizados los átomos, pueden recombinarse o formar nuevos compuestos químicos, cuyo cambio puede ser permanente o de gran duración. La radiación no ionizante mueve a los electrones de los átomos sin alterarlos químicamente, la radiación es de menor energía, no produce ruptura de enlaces y sus efectos se clasifican en térmicos y no térmicos.

### 1.1.2. Tipos de radiación ionizante.

La ICRUM (International Commission on Radiation Unit and Measurements, 1971) ha recomendado una terminología en referencia a la radiación ionizante en la cual se enfatiza una diferencia entre la interacción de la radiación con la materia de partículas cargadas y neutras como sigue:

- **Radiación Ionizante Directa.** Es debido a las partículas cargadas, las cuales depositan su energía directamente en la materia por pequeñas interacciones de fuerzas coulombianas a lo largo de su trayectoria.
- **Radiación ionizante Indirecta.** Es causada por los fotones de rayos X y  $\gamma$  o neutrones, las cuales primero transfieren su energía a partículas cargadas en la materia. La absorción de energía por el medio se da por partículas cargadas mediante la ionización directa. [9]

#### 1.1.2.1. Radiación ionizante directa.

##### Electrones.

Cuando un fotón incide sobre un medio, interacciona principalmente con los electrones que se encuentran ligados a los átomos y los electrones libres, el fotón tiene la suficiente energía para arrancar al electrón del medio y se conoce como efecto fotoeléctrico, a estos electrones se les nombra como fotoelectrones. Otro fenómeno ocurre cuando el fotón incidente solo tiene la energía suficiente para dispersar a los electrones libres este fenómeno se conoce como efecto Compton y a los electrones dispersados se les denomina electrones Compton. La probabilidad de que cada una de estas interacciones ocurra depende de la energía de la radiación y del material que atraviesa. [2]

También se tiene la producción de electrones mediante decaimientos radiactivos y se conocen como partículas beta ( $\beta^-$ ), estas partículas provienen del incremento del número atómico (Z) provocando la transformación de un neutrón en un protón, en la ecuación 1.1 se muestra esta transformación, dando lugar a la producción de un electrón y un antineutrino.



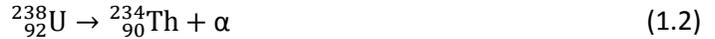
##### Protones.

Este tipo de partículas son producidas en ciclotrones a través del bombardeo de pequeñas cantidades de hidrógeno con electrones acelerados. Junto con los neutrones este tipo de partículas se encuentran en los núcleos atómicos.

##### Partículas alfa ( $\alpha$ ).

Las partículas alfa son núcleos ionizados de helio ( $^4\text{He}$ ), consisten en dos protones y dos neutrones, tienen carga eléctrica positiva (+2e) y una masa de 4 unidades de masa atómica (uma), se forman mediante la desintegración radiactiva de núcleos pesados.

En la ecuación 1.2 se tiene la desintegración de un núcleo de Uranio\_238 emitiendo partículas alfa para convertirse en un núcleo de Torio\_234.



Como las partículas  $\alpha$  tiene una masa relativamente grande (comparada con otras partículas) no llegan a recorrer grandes distancias en el medio material, por ejemplo en el tejido humano alcanzan solamente algunos micrómetros.

### 1.1.2.2. Radiación ionizante indirecta.

#### Fotones.

Una definición formal de fotón es como un paquete o un quantum de energía, este paquete viaja a la velocidad de la luz en el vacío ( $c = 3 \times 10^8 \text{ m/s}$ ) y no posee masa en reposo, a partir de la ecuación 1.3 se puede obtener la energía del fotón, donde  $h$  es la constante de Planck ( $4.135667 \times 10^{-15} \text{ eV/s}$ ) y  $\nu$  es la frecuencia del fotón. [9]

$$E = h\nu \quad (1.3)$$

Dependiendo de la energía que poseen los fotones se clasifican en ondas de radio, infrarrojo, luz visible, luz ultravioleta, rayos X, rayos gamma. En la figura 1.1 se tiene la clasificación de los fotones (espectro electromagnético) en función su longitud de onda.

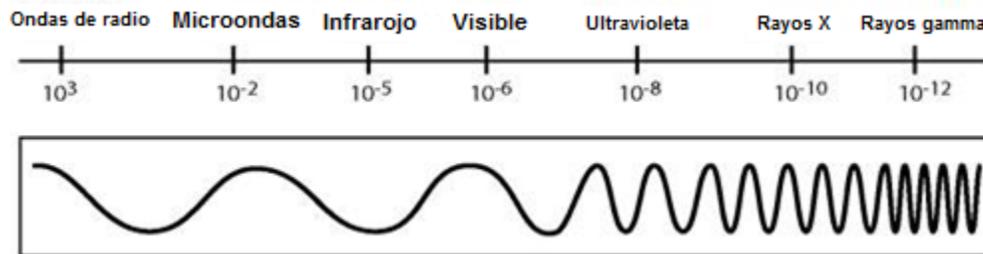


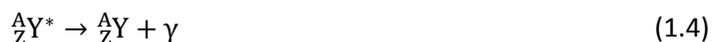
Figura 1.1. Espectro electromagnético.

Debido a su longitud de onda muy pequeña (mayor energía) los rayos gamma y los rayos X son considerados como radiación ionizante indirecta.

#### Rayos gamma ( $\gamma$ )

A partir de decaimientos radiactivos en un núcleo excitado, se generan los rayos gamma. La energía de los rayos gamma se determina a partir de los niveles energéticos en el radionúclido, estos niveles tienen energías alrededor de 620keV hasta energías del rango de 2.75MeV. Es importante mencionar que un radionúclido es un isótopo (igual número de protones, diferente número de neutrones en su núcleo) de un elemento que es inestable y es transformado por la emisión de partículas nucleares o radiación electromagnética en un elemento de estado más estable.[2]

La ecuación 1.4 representa la emisión gamma de un radionúclido, donde  ${}^A_Z\text{Y}^*$  representa al núcleo excitado,  ${}^A_Z\text{Y}$  es el estado fundamental del núcleo ( $E=0$ ).



La energía del rayo gamma emitido se obtiene mediante la diferencia de energías del estado excitado y el estado fundamental definida en la ecuación 1.5.

$$E_{\gamma_1} = E_i - E_f \quad (1.5)$$

En la naturaleza existen varios tipos de radionúclidos con emisión de radiación gamma, los radionúclidos más utilizados en el área de radioterapia son cobalto\_60 ( $^{60}\text{Co}$ ) y cesio\_137 ( $^{137}\text{Cs}$ ). A continuación se describen las características principales de la radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$ . [11]

### Rayos gamma de $^{137}\text{Cs}$ .

El radionúclido de  $^{137}\text{Cs}$  presenta dos decaimientos energéticos hasta llegar a su estado fundamental, el primer decaimiento se tiene de la transición del estado excitado de  $^{137}\text{Cs}$  a un estado meta-estable donde solo se emiten partículas beta, el segundo decaimiento se da en la transición del estado meta-estable al estado fundamental convirtiéndose en un núcleo estable de  $^{137}\text{Ba}$ , en este decaimiento se emiten rayos gamma de  $^{137}\text{Cs}$  con una energía de 0.661MeV. [2]

### Rayos gamma de $^{60}\text{Co}$ .

El núcleo excitado de  $^{60}\text{Co}$ , con una energía de 2.819MeV, se convierte en un núcleo estable de  $^{60}\text{Ni}$  emitiendo partículas beta y radiación gamma, esta emisión se da mediante tres diferentes decaimientos teniendo dos estados meta-estables de 2.505 y 1.33MeV, en el primer decaimiento solo se emiten partículas beta con energías de 0.34 y 1.487MeV, en el segundo decaimiento se tiene la transición del estado meta-estable de 2.050MeV al estado meta-estable de 1.33MeV, emitiendo rayos gamma con una energía de 1.173MeV, para el tercer y último decaimiento se presenta en la transición del estado meta-estable de 1.332MeV, al estado fundamental o núcleo estable de  $^{60}\text{Ni}$ , emitiendo radiación gamma con una energía de 1.332MeV.[11]

### Rayos X.

Este tipo de radiación ionizante se genera en un tubo de rayos X donde se tiene un ánodo y un cátodo, en el cátodo se tiene un filamento y en el ánodo o blanco se tiene una diferencia de potencial. Los materiales utilizados en el cátodo deben ser de un elevado peso atómico, por ejemplo el tungsteno. Cuando se eleva la temperatura del filamento mediante el paso de una corriente eléctrica, se produce un flujo de electrones en la superficie, el ánodo atrae este flujo de electrones y al colisionar con el blanco se emiten rayos X en todas direcciones. En el tubo de rayos X solo se tiene el 1% de eficiencia en la emisión de rayos X.

Los rayos X se producen mediante dos procesos diferentes: por colisiones con los electrones del átomo (rayos X característicos) y el frenado de los electrones por el núcleo atómico (bremsstrahlung). Los rayos X característicos se generan a partir de transiciones electrónicas de los electrones en los átomos, a diferencia de la radiación *bremsstrahlung* la cual se obtiene mediante la interacción coulombiana entre un electrón incidente y el núcleo del átomo. Los rayos X característicos son emitidos con una energía en el rango de 0.001 a 1MeV.

### Neutrones.

Son partículas de masa 1, pero sin carga eléctrica, por lo que solo interactúan con los núcleos de los átomos y son producidos a partir de reacciones nucleares, a continuación se mencionan algunas formas de producción de neutrones:

1. En la reacción ( $\alpha$ , n),
2. En la reacción ( $\gamma$ , n),
3. Fisión espontánea,
4. Reacciones nucleares en aceleradores de partículas,
5. Fusión.

Los neutrones tienen una alta capacidad de penetración en un determinado medio, debido al corto alcance en las fuerzas nucleares. [11]

## 1.2. Interacción de la Radiación con la Materia y Métodos para Medir la Dosis.

Cuando la radiación interactúa con la materia le cede energía provocando la excitación o ionización de sus átomos. Existen diferentes tipos de fotones y partículas con diferentes energías que pueden interactuar con la materia, estos son: fotones de baja, mediana y alta energía, electrones, protones u iones pesados. La calidad de los haces de radiación se define en términos de la energía promedio de las partículas. De esta manera los rayos X generados a potenciales menores de 100kV son considerados de baja energía por encima de 100kV se generan rayos X de medianas energías, los fotones de altas energías son generados por electrones con energías en el intervalo de 1 a 50MeV.

### 1.2.1. Interacciones con fotones.

Los rayos gamma y los rayos X interactúan con la materia de diferentes formas. Existen principalmente tres clases de interacciones: **efecto fotoeléctrico**, **dispersión Compton** y **producción de pares**. [9,23,24]

En la interacción **fotoeléctrica** los fotones incidentes al interactuar con los electrones de un átomo les ceden toda su energía y como consecuencia los electrones son expulsados del material. La energía cinética del fotoelectrón expulsado es igual a la energía del fotón incidente menos la energía de enlace del electrón en el átomo. Cuando el electrón es expulsado de una de las capas más internas del átomo, la vacancia originada en la estructura electrónica es ocupada posteriormente por la transición de uno de los electrones de las capas más externas. Esta transición es acompañada por la emisión de **rayos X característicos** provenientes del átomo.

El **efecto Compton o dispersión Compton** es la dispersión elástica de un fotón por un electrón conservándose tanto la energía como el momento. Este efecto ocurre principalmente con electrones libres o débilmente unidos al átomo.

La **producción de pares** es un proceso de absorción en el cual el fotón incidente desaparece originándose un par de electrones (un positrón y un electrón). Este proceso puede ocurrir principalmente en el campo de fuerzas de Coulomb cercano al núcleo atómico y con más baja probabilidad en el campo de un electrón atómico. La energía del fotón se divide equitativamente entre las energías de la masa en reposo del electrón y del positrón. La energía de la masa en reposo de un electrón (positivo o negativo) es de 0.511MeV. Por lo tanto el fotón debe tener una energía mínima de 1.022MeV para llevar a cabo la producción de pares. Una vez formado el par electrón-positrón estos se mueven rápidamente perdiendo energía debido a las colisiones con los átomos hasta finalmente combinarse formando dos fotones cada uno con energía de 0.511MeV. A estos dos fotones se les llama **radiación de aniquilación**.

### 1.2.2. Magnitudes que describen la interacción de la radiación ionizante con la materia.

La **Exposición** se define como el cociente de  $dQ$  entre  $dm$  donde el valor de  $dQ$  es el valor absoluto de la carga total de los iones de una señal producida en el aire cuando todos los electrones son liberados por fotones en el aire de masa  $dm$  y son completamente detenidos en el aire. [1] La *exposición* se representa por medio de la relación:

$$X = \frac{dQ}{dm} \quad (1.6)$$

La unidad de exposición en el Sistema Internacional (SI) es el Coulomb/Kg =roentgen (R). Esta unidad solo se aplica a radiación gamma y rayos X en aire. [11]

$$1R = \frac{1 \text{ ues}}{1.29 \times 10^{-3} \text{ g aire}} * \frac{1 \text{ Coulomb}}{2.99 \times 10^{-9} \text{ ues}} * \frac{1 \text{ g}}{10^{-3} \text{ Kg}} \quad (1.7)$$

$$1R = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/Kg} = 87.5 \text{ erg/g}$$

La magnitud **Kerma (K)** (energía cinética liberada en el medio) es el cociente de  $dE_{tr}$  por  $dm$

$$K = \frac{dE_{tr}}{dm} \quad (1.8)$$

Donde:  $dE_{tr}$  es la suma de las energías cinéticas iniciales de todas las partículas ionizadas cargadas, liberadas por partículas ionizantes en un material de masa  $dm$ . [1]

La **Dosis Absorbida (D)** es el cociente de  $d\bar{\epsilon}$  por  $dm$  donde  $d\bar{\epsilon}$  es la energía media impartida por la radiación ionizante en masa  $dm$ . [1] En el sistema internacional de unidades (SI) la unidad de dosis absorbida es el gray (Gy).

$$1 \text{ Gy} = 1 \frac{\text{J}}{\text{Kg}}$$

La dosis absorbida no es suficiente para determinar un daño biológico producido por los diferentes tipos de radiación, por ende la relación de daño biológico y la dosis absorbida se relaciona mediante un factor de calidad Q el cual debe multiplicarse por la dosis absorbida para describir el daño biológico causado, al producto del factor de calidad Q por la dosis absorbida (D) se le denomina **dosis equivalente (H)** y se representa mediante la siguiente ecuación: [1]

$$H = D * Q * N \quad (1.9)$$

donde: N es el producto de todos los demás factores modificadores.

El factor de calidad  $Q$  depende de los tipos de radiación y de la transferencia lineal de energía (LET) de la radiación, sin embargo para protección radiológica se asume que el valor de  $Q$  es constante para ciertos tipos de radiaciones por ejemplo toma el valor de 1 para electrones, radiación beta, rayos X, radiación gamma y bremsstrahlung. [2] Las unidades de  $H$  son el *Sievert (Sv)*, que representa el efecto de la absorción de un Joule de energía en un kg de materia ( $1\text{ Sv} = 1\text{ J/kg}$ ). La unidad antigua de equivalente de dosis es el *rem*, el cual representa el efecto de la absorción de 100ergs de energía por gramo de material, por lo que:

$$1\text{Sv} = 100\text{ rem}$$

### 1.3. Luminiscencia.

El fenómeno de luminiscencia se debe a la emisión de la luz en distintos tipos de materiales, donde la longitud de onda de luz emitida es una característica de los materiales luminiscentes. La emisión de la luz es la liberación de la energía almacenada dentro los sólidos previamente excitados por luz visible, infrarroja (IR), luz ultra violeta (UV) y radiaciones ionizantes. La luz emitida tiene una mayor longitud de onda a la de la radiación incidente de acuerdo a la ley de Stokes. [12]

#### 1.3.1. Fenómenos luminiscentes y métodos de excitación.

Como se menciona anteriormente, se necesita de una fuente de radiación externa para observar el fenómeno de luminiscencia, esto es debido a la excitación de los electrones por la fuente de radiación y dependiendo del tiempo de regreso de los electrones de un nivel excitado a un nivel de menor energía en un material el fenómeno de luminiscencia se puede clasificar en: fluorescencia y fosforescencia. Donde la fluorescencia se presenta en un tiempo menor a  $10^{-8}$  s y la fosforescencia, se observa en tiempos mayores a  $10^{-4}$  s, este tiempo de retraso en la emisión de luz para la fosforescencia es debido a la existencia de estados meta-estables (impurezas y defectos) en el material, estos estados son considerados como trampas para electrones.[12]

El fenómeno de luminiscencia, se describe mediante la emisión de la luz de un material orgánico o inorgánico. La emisión de la luz se produce por la excitación y des-excitación del electrón en el átomo, el electrón pasa a un nivel de mayor energía por efecto de la energía absorbida y cuando regresa a su estado fundamental lo hace emitiendo luz.[12]

En la tabla 1.1 se muestran algunos tipos de fenómenos luminiscentes y los métodos de excitación utilizados para observar estos fenómenos:

**Tabla 1.1.** Tipos de fenómenos luminiscentes observados en diversos materiales. [12]

Fenómeno Luminiscente	Método de Excitación
Catodoluminiscencia	Haces de electrones
Fotoluminiscencia	Ultravioleta y luz visible
Bioluminiscencia	Reacciones bioquímicas
Quimioluminiscencia	Reacciones químicas
Sonoluminiscencia	Ondas de sonido
Triboluminiscencia	Fricción
Piezoluminiscencia	Presión

### 1.3.2. Termoluminiscencia.

La luminiscencia térmicamente estimulada, es la emisión de luz en un material previamente irradiado, al calentarlo por debajo de su temperatura de incandescencia, usualmente conocida como Termoluminiscencia. [12]

A medida en que se incrementa la temperatura, los electrones y huecos comenzarán a vibrar hasta alcanzar la energía cinética suficiente para escapar de los estados metaestables y recombinarse con la emisión de los correspondientes.

### 1.3.3. Mecanismos de la termoluminiscencia.

Para poder explicar el fenómeno de termoluminiscencia se suele utilizar el modelo físico de bandas de energía:

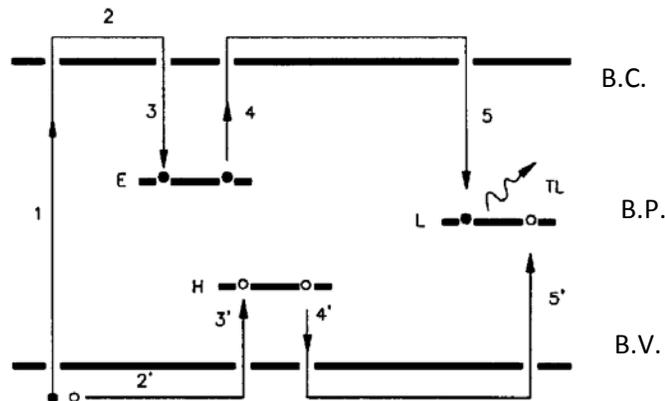


Figura 1.2. Modelo de bandas y emisión termoluminiscente. ● electrón, ○ hueco.[11]

El proceso de excitación-recombinación de los electrones y huecos generados mediante la incidencia de radiación ionizante en un material termoluminiscente se observa en la figura 1.2, este proceso se describe a continuación:

Cuando la radiación incide en el material, los electrones excitados pasan de la banda de valencia a la de conducción (1), ya en la banda de conducción los electrones se desplazan (2) por esta misma banda hasta ceder la energía suficiente para regresar a la banda de valencia, cuando los electrones regresan a la banda de valencia pueden ser atrapados en defectos (intersticiales (3), vacancias, etc.) o por impurezas en el material, estos defectos o impurezas son conocidos como trampas. Por otro lado, los huecos se desplazan por la banda de valencia hasta ser atrapados por trampas para huecos ubicadas en niveles cercanos a la banda de valencia (3').

Los electrones atrapados en un material termoluminiscente pueden ser retenidos por períodos prolongados de tiempo hasta la aplicación de una energía externa conocida como estimulación térmica, cuando es suficiente se logrará liberar a los electrones (4) y los huecos (4') de las trampas. Tanto los electrones como los huecos se desplazan por su banda correspondiente y tras ocurrir una recombinación (5 y 5') se produce la emisión de un fotón con longitud de onda ubicada en el espectro visible. [11]

La intensidad de la luz emitida por un sólido cristalino depende considerablemente de la concentración y tipo de impurezas o dopantes presentes en el material.

## 1.4. Dosimetría por Termoluminiscencia.

La capacidad de almacenar la energía a partir de la irradiación por un sólido cristalino, es un factor importante para la dosimetría termoluminiscente y es generalmente asociada con la presencia de activadores (impurezas y defectos estructurales). En los últimos años se han investigado materiales que exhiben las propiedades termoluminiscentes necesarias para ser usados en dosimetría de las radiaciones ionizantes.

Un dosímetro se puede definir como cualquier dispositivo, con un volumen determinado sensible a la radiación ionizante, capaz de proporcionar una lectura TL asociada con la dosis absorbida. [10] Los dosímetros se pueden clasificar en absolutos y secundarios. Se dicen que son dosímetros absolutos si miden la energía absorbida directamente (calorímetros y cámaras de ionización), los secundarios deben ser calibrados para medir la energía absorbida (dosímetros de estado sólido y químicos) [10], un dosímetro termoluminiscente es un dosímetro secundario, y debe ser colocado en un soporte apropiado para ser utilizado por personas o en algún lugar donde se encuentre en contacto con el medio ambiente. [1]

### 1.4.1. Características dosimétricas de los materiales TL.

Los materiales TL utilizados en dosimetría deben presentar las siguientes características principales: alta sensibilidad a la radiación ionizante, capacidad de almacenar la información por largos periodos de tiempo (bajo desvanecimiento), una curva termoluminiscente con un pico entre el rango de 100 y 250°C y una respuesta lineal en función de la dosis absorbida, una repuesta TL reproducible, un umbral de detección bajo, respuesta estable en función de las condiciones ambientales, etc. Generalmente se puede decir que los materiales TL funcionan mejor como detectores de radiación si se les somete a un tratamiento térmico uniforme antes de ser irradiados y después de realizar la lectura TL. [13]

#### Formación de la curva TL

El proceso de emisión luminiscente durante el calentamiento del sólido cristalino implica la desocupación de las trampas en el mismo, por lo que la probabilidad de desocupación de las trampas a temperaturas bajas es despreciable, ya que los portadores de carga no tienen la energía cinética suficiente para escapar del pozo de potencial. (Figura 1.2)

Por lo tanto a medida que aumenta la temperatura, la probabilidad de desocupación de las trampas es mayor. Durante cierto intervalo de temperatura, una fracción de los portadores de carga liberados se dirige hacia los centros de recombinación haciendo que disminuya la población de portadores de carga atrapados, por lo que la intensidad de luz emitida alcanza un máximo, dando origen a un patrón de luminiscencia en función de la temperatura llamado curva termoluminiscente (TL).

Debido a la existencia de más de un tipo de trampas en un material TL el proceso antes descrito se repite para cada tipo de trampas, dando lugar a varios puntos de máxima intensidad de emisión luminosa en la curva TL, los cuales se conocen comúnmente como picos TL. Cada pico está caracterizado por la temperatura a la cual se presenta la máxima intensidad de la emisión, por la energía de activación o profundidad de la trampa ( $E$ ) y por el factor pre-exponencial o factor de frecuencia ( $s$ ). [14]

### Tratamiento Térmico

Los defectos o trampas presentes en un cristal se pueden dividir en tres tipos: (a) defectos térmicos o intrínsecos, (b) defectos extrínsecos o impurezas debidas a iones sustitucionales y (c) defectos inducidos por la radiación ionizante. La temperatura a la que se somete la red cristalina determina el número de imperfecciones; en el primer tipo de defectos, mientras más alta sea la temperatura de exposición del material mayor será el número de imperfecciones encontradas. Esto es de tomarse muy en cuenta a la hora de elegir el tratamiento térmico más adecuado para el material. [14,15]

### Sensibilidad

La sensibilidad ( $S$ ) (ecuación 1.10) de un material TL se puede expresar como la razón de la luz emitida por el material (intensidad TL) entre la unidad de masa del material TL por unidad de exposición a la radiación ionizante, a esta razón también se le llama eficiencia TL intrínseca y representa la proporción de energía absorbida transformada en fotones luminiscentes. [1] Es decir:

$$S = \frac{\text{Intensidad TL}(nC)}{\text{Masa}(mg) \times \text{Dosis}(mGy)} \quad (1.10)$$

La sensibilidad puede cambiar debido a los diferentes tamaños de granos presentes en el material y a la energía del fotón incidente o la transferencia lineal de energía de la radiación. [16,17] Por consiguiente, la sensibilidad depende de las características del material y del equipo lector TL. Generalmente esta propiedad se verifica considerando un dosímetro comercial TLD-100 como referencia. La sensibilidad de un material TL puede incrementarse al introducir impurezas en la estructura cristalina del compuesto original y funcionar como activadores del fenómeno TL por estar asociadas con las trampas y los centros luminosos. [9,14]

### Homogeneización del lote

Se dice que un lote de dosímetros es homogéneo, cuando el valor de la dosis, obtenido para un dosímetro en ese lote no difiere del valor obtenido para cualquier otro dosímetro del mismo lote, por más del 30%, es decir:

$$100 \frac{D_{max} - D_{min}}{D_{min}} \leq 30\% \quad (1.11)$$

donde:  $D_{max}$  y  $D_{min}$  es la dosis máxima y mínima obtenida en un lote de dosímetros. [1]

### Reproducibilidad

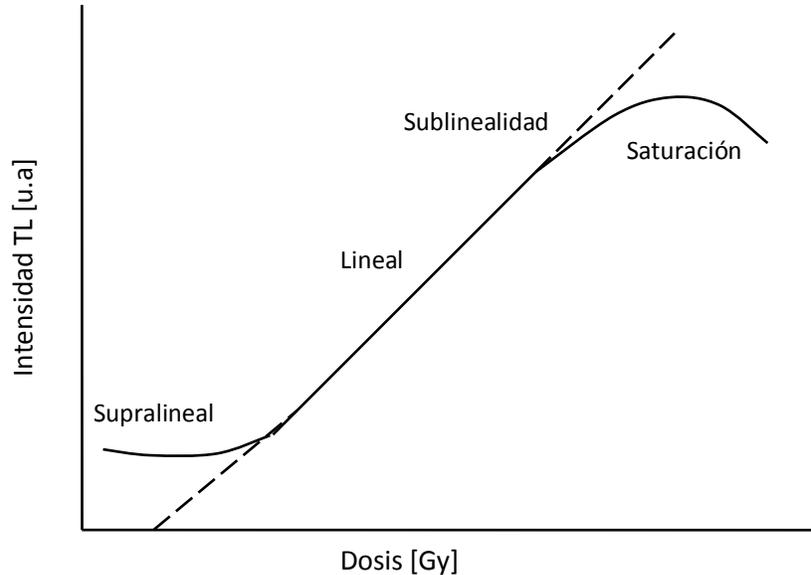
La reproducibilidad de un dosímetro TL, significa idealmente, que debe obtenerse siempre la misma respuesta TL al irradiar el mismo dosímetro, a la misma dosis, por un determinado número de veces.[5] El coeficiente de variación de las lecturas obtenidas en cada uno de los ciclos de borrado térmico, irradiación y lectura de un material TL óptimo para dosimetría ambiental y personal no debe exceder  $\pm 7.5\%$ . Por tanto, la reproducibilidad debe cumplir con la siguiente expresión [1]:

$$100 \frac{DS}{\bar{x}} \leq \pm 7.5\% \quad (1.12)$$

donde:  $\bar{x}$  es el promedio de las lecturas y  $DS$  es la desviación estándar del promedio de lecturas.

### Respuesta TL en función de la dosis

La respuesta TL de un material TL que presente este fenómeno, comprende por lo general cuatro regiones: supralineal, lineal, sublineal y saturación, como se muestra en la figura 1.3. La región lineal es la más importante ya que en ella se realizan las mediciones con la máxima precisión. Esta zona está limitada por los fenómenos generadores de señales espurias, los cuales alteran las mediciones reales. Para fines prácticos se recomienda utilizar la región lineal de la respuesta TL del material en cuestión.



**Figura 1.3.** Respuesta TL en función de la dosis absorbida.

En la región de supralinealidad la sensibilidad de muchos materiales se incrementa con la dosis, el origen de este fenómeno aún no es bien determinado y puede ser diferente según el material considerado. Si bien la sensibilidad del material es mayor en la zona de supralinealidad, la precisión de las mediciones es menor a la que se obtiene en la zona lineal. Esto se debe a la necesidad de introducir algún factor de corrección, el cual genera errores suplementarios y que varían considerablemente con la transferencia lineal de energía de la radiación. [6,18]

La zona de sublinealidad se presenta por la inversión de la sensibilidad, ésta antecede a la zona de saturación donde todas las trampas están ocupadas. En la zona de saturación se presenta coloración de los cristales y ocurre la destrucción de ciertos elementos de la estructura cristalina por efecto de la radiación. Generalmente los materiales que se han irradiado hasta los niveles de saturación son dañados irreversiblemente en la mayoría de sus propiedades TL. [6]

### Umbral de detección

El umbral de detección está en función de la estadística de las lecturas de fondo obtenidas en un dosímetro no irradiado. En otras palabras, es la dosis más pequeña que puede ser medida significativamente respecto a la dosis cero de un dosímetro no irradiado. Por lo general se admite un umbral de detección igual a tres veces la desviación estándar del total de las lecturas de fondo.[15]

Un umbral relativamente bajo es característico de un buen material TL. La luminiscencia umbral puede confundirse con la señal espuria observada en algunos materiales por la presencia de oxígeno sobre la superficie de la muestra. Para eliminar este fenómeno es conveniente efectuar las lecturas en una atmósfera inerte empleando argón o nitrógeno.

### Desvanecimiento de la señal TL

La fuga de electrones ocurre cuando las trampas presentan incapacidad para retener electrones o huecos a temperatura ambiente después de una irradiación y si la temperatura ambiente se incrementa esta fuga de electrones aumenta. Por ejemplo en un cristal TL típico el pico dosimétrico, situado entre 200-225°C, presenta una fuga de electrones despreciable a temperatura ambiente, tiene una vida media de electrones atrapados que puede medirse en meses y hasta años. Los picos que aparecen a bajas temperaturas tienen vidas medias cortas, por ejemplo el que aparece a 150°C presenta usualmente una vida media de unos cuantos días, mientras que el pico a 100°C tiene una vida media de unas cuantas horas. Generalmente a temperaturas mayores a 225°C las trampas son más estables lo cual podría significar que para fines de dosimetría se tiene una ventaja, pero no es así debido que a estas temperaturas se tiene la presencia de una señal espuria, la cual se puede reducir realizando las lecturas en una atmósfera inerte con flujo de gas nitrógeno. [18,20]

La relación establecida entre las energías de activación o profundidades de las trampas, la estabilidad de las mismas y la temperatura de liberación, involucra consideraciones de carácter vibracional entre los entes móviles y la red cristalina, esto se basa al hecho de que los cristales una vez excitados no permanecen en tal estado, sino que tienden a perder cierta cantidad de información TL con el transcurso del tiempo sin que haya necesidad de aplicarles algún tipo de energía. A la información perdida de esta forma se le conoce como desvanecimiento TL (*fading*), es característico de cada material y está relacionado con el tiempo de vida media de los picos TL.

El desvanecimiento (*fading*) de los dosímetros irradiados no debe diferir de las lecturas iniciales por más de: [1]

- 5% para 30 días de almacenamiento bajo condiciones de temperatura ambiente (20°C)
- 10 % para 90 días de almacenamiento bajo condiciones de temperatura ambiente (20°C)
- 20 % para 30 días de almacenamiento a 50°C y 65% de humedad

### Influencia de las condiciones ambientales

Los factores ambientales tales como la temperatura y la humedad pueden influir en la respuesta del dosímetro, si el material TL es expuesto a la luz del sol puede haber pérdida de información por desvanecimiento, introduciendo un error en las mediciones de la dosis. [14,19,21]

#### ➤ **Temperatura**

La temperatura tiene un efecto directo sobre la respuesta del material TL a la radiación. Si los detectores son irradiados o mantenidos a una temperatura superior a la ambiente deberán seleccionarse materiales con trampas más profundas para evitar pérdida de información. Estos materiales serán los que presenten mayor estabilidad a altas temperaturas.

### ➤ Humedad

La humedad ambiental altera la superficie de algunos cristales y modifica su transparencia térmica y por consiguiente su sensibilidad. Este fenómeno es importante para algunos materiales TL higroscópicos.

#### 1.4.2. Sistema de dosimetría termoluminiscente.

El sistema de dosimetría termoluminiscente está conformado principalmente por los siguientes elementos: [1]

1. Dispositivos pasivos mejor conocidos como dosímetros cuyas características son la incorporación de algunos medios de identificación y contener uno o más detectores expuestos a las propiedades de termoluminiscencia.
2. Un equipo lector utilizado para elevar la temperatura de los detectores después de ser expuestos a la radiación ionizante, este equipo mide la cantidad de luz emitida por el detector al ser calentado y correlaciona las lecturas obtenidas con la dosis de radiación recibida.
3. Otros equipos adicionales asociados al proceso de dosimetría termoluminiscente tales como horno o mufla usados para tratamientos térmicos de borrado de los dosímetros para su reutilización.

#### Equipo de lectura

Lector de dosímetros termoluminiscentes: Es un instrumento usado para medir la luz emitida por los dosímetros TL. Está compuesto esencialmente por un dispositivo de calentamiento, un dispositivo de medición de la luz (tubo fotomultiplicador) y la electrónica asociada. [1]

Las normas proporcionan los criterios de funcionamiento y pruebas para la determinación de un sistema dosimétrico de termoluminiscencia.

#### Sistema de calentamiento

El propósito principal del ciclo de calentamiento, es aportar la energía suficiente para que los electrones y huecos sean liberados de las trampas. Generalmente este ciclo inicia con un precalentamiento para desocupar rápidamente las trampas a baja temperatura. A niveles de alta exposición a la radiación es necesario usar una etapa de borrado (*annealing*) a altas temperaturas para asegurar la liberación completa de todos los electrones de las trampas para la siguiente etapa de irradiación. Los sistemas de calentamiento empleados en los lectores TL comerciales deben ser capaces de leer diferentes materiales TL en una gran variedad de formas físicas, con diferentes propiedades térmicas, además deben ser capaces de proporcionar un amplio intervalo de linealidad térmica controlando la rapidez de calentamiento, el intervalo de integración de la señal TL, el precalentamiento y los periodos de enfriamiento. El calentamiento debe ser rápido y reproducible.

#### Sistema de medición de la señal TL

Cuando un fotón de luz incide en el fotocátodo del tubo fotomultiplicador (TFM), se genera una emisión de electrones. Estos electrones son atraídos por el polo positivo del primer dínodo donde se generan dos o tres electrones más por cada fotoelectrón incidente. A su vez estos electrones son atraídos hacia el segundo dínodo donde se incrementan nuevamente el número de electrones. De esta manera millones de electrones alcanzan al ánodo por cada electrón que sale del cátodo originando una sucesión de pulsos eléctricos hacia el ánodo. La

cantidad de pulsos registrados es proporcional a la intensidad TL. Esta información llega finalmente a una PC donde es digitalizada y guardada para su análisis.

En los equipos lectores TL las características de operación pueden cambiar de un modelo a otro pero los principios básicos de detección son prácticamente los mismos. A continuación se describen brevemente las características generales de operación de un lector TL y en la figura 1.4 se observa el diagrama de un equipo TL.

1. **Plancheta.** Calienta las muestras en forma controlada, está acoplada a un circuito de calentamiento formado por un calefactor eléctrico de alta corriente y un termopar. La mayoría de los sistemas comerciales calientan al material por medio de electricidad. Los métodos más comunes de calentamiento son: a) por contacto directo entre el material TL y la plancheta y b) haciendo fluir gas caliente sobre el material.
2. **Sistema de acoplamiento óptico.** Sus funciones consisten en aislar térmicamente a la plancheta del TFM, servir como condensador óptico haciendo que la mayor parte de la luz emitida llegue al TFM y disminuir la contribución de las señales espurias, especialmente radiación infrarroja.
3. **Tubo fotomultiplicador (TFM).** En el fotocátodo se produce el desprendimiento de electrones en un número proporcional a la intensidad y energía de la luz emitida. Estos electrones al ser multiplicados en los dínodos producen en el ánodo una corriente proporcional a la señal luminosa recibida.
4. **Fuente reguladora de alto voltaje.** Este dispositivo permite seleccionar el voltaje óptimo de operación, siendo además lo suficientemente estable como para obtener resultados reproducibles.
5. **Amplificador de pulsos.** El ajuste de este dispositivo no se encuentra al alcance del usuario ya que sólo se puede seleccionar un factor de amplificación de x1 o x10. Sin embargo, se tiene la posibilidad de reducir el ruido proveniente del TFM ajustando el control de supresión de corriente oscura.
6. **Integrador de corriente.** Permite conocer el total de la señal emitida por la muestra durante todo o parte de su calentamiento. Este circuito es un sistema electrónico simple de alta sensibilidad y bajo ruido y se encuentra acoplado a un circuito electrónico con salida visual de tipo digital cuya entrada analógica está constituida por la salida del integrador.
7. **Sistema de control.** Este dispositivo logra la simultaneidad o secuencia de los eventos regulando el calentamiento de la plancheta dentro de los límites deseados con la velocidad adecuada y seleccionando el intervalo de integración de la corriente.

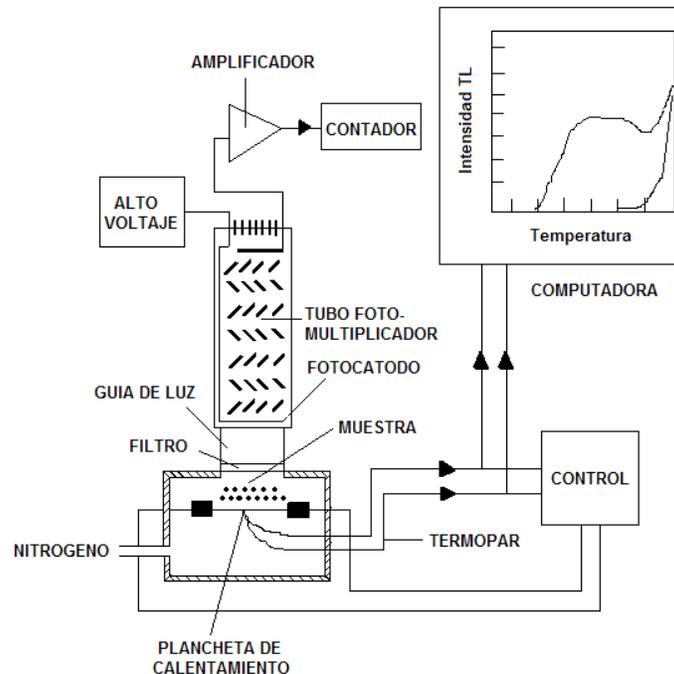


Figura 1.4. Diagrama de un lector TL convencional.

### TL espuria

Este tipo de TL se presenta en muestras que no han sido irradiadas previamente con ninguna fuente de radiación, una de las posibles causas que originan la TL espuria es la tribo-termoluminiscencia debido a la agitación o vibración entre los granos de la muestra. Además la presencia de trazas de aire en la cámara de calentamiento de la muestra puede incrementar fuertemente la señal TL espuria y por lo tanto dicha contribución no corresponderá a la respuesta TL verdadera inducida por la radiación.[22] Una forma de suprimir la TL espuria es realizar las lecturas TL de las muestras en atmósfera inerte. Esto se logra con un flujo de gas nitrógeno o argón.

### 1.4.3. Calibración de los dosímetros TL.

En este trabajo, las curvas de calibración, para evaluar los dosímetros expuestos a la radiación se realizaron usando el Software TURBO PASCAL Ver. 5.1. Al hacer una corrida de este Software en la computadora, aparece una ventana de dialogo, donde el operador debe indicar el número de dosímetros a evaluar y el número de lecturas TL de cada uno, una vez cargada la información, se despliegan en pantalla las lecturas promedio de cada dosímetro, su dosis y su desviación estándar correspondiente.

La medición de la dosis absorbida se debe a la interacción de la radiación ionizante en la materia donde una de las condiciones importantes para dosimetría es el equilibrio electrónico. Esto es una situación que existe cuando los electrones (producidos por la radiación interaccionan en un volumen) escapan del volumen pero son remplazados por electrones producidos fuera del volumen que entran al volumen y disipan una porción de su energía. En otras palabras el equilibrio del espesor en el material es igual al rango de la energía de los electrones secundarios producidos por radiación primaria. La energía depositada por la radiación ionizante debe atravesar uniformemente el medio solido.[2]

Si una muestra es irradiada por un haz de fotones sin la cantidad de material necesario para lograr el equilibrio electrónico, la dosis promedio recibida es menor que la que podría recibir bajo condiciones de equilibrio electrónico.[5] Plásticos tales como la Lucita, Teflón, Plexiglás, Perspex, Nylon o materiales similares, son comúnmente usados para atenuar y dispersar eficientemente el haz.

Para radiaciones de baja energía no es necesario agregar un espesor considerable de material de acumulación. Para pastillas de LiF con una densidad de  $2.6 \text{ g/cm}^3$  se requiere de aproximadamente 0.4 mm de espesor. Sin embargo, para polvo de LiF se requiere el doble de éste espesor debido a la baja densidad promedio.[5]

Para la calibración de los dosímetros se debe tomar en cuenta la curva de la respuesta TL ya que la mayoría de los materiales TL tienen un umbral de detección de la dosis a partir del cual la intensidad de la luz emitida por unidad de masa es proporcional a la dosis absorbida en el material TL. Suponiendo la respuesta del lector TL reproducible y despreciando la atenuación de la luz emitida por el material TL que llega al tubo fotomultiplicador durante el calentamiento, se puede decir que las mismas lecturas TL resultan de la dosis promedio dada al material.

Por tanto la dosis absorbida en el material TL se obtiene de la siguiente expresión:

$$L = b + aD \quad (1.13)$$

donde:  $a$  es la pendiente,  $b$  es la ordenada al origen,  $L$  es la lectura del dosímetro TL y  $D$  es la dosis absorbida asociada a la lectura del dosímetro TL.[12]

### 1.5. Cinética del Fenómeno de Termoluminiscencia.

Una curva TL es normalmente una prolongación continua, aunque en realidad está compuesta de varios picos sobrepuestos. La curva TL con varios picos representa las trampas de diferente energía presentes en el material TL, por ejemplo para trampas profundas el grado de vibración térmica de la red cristalina requerida para la liberación de los electrones es mayor que para las trampas poco profundas. Similarmente durante el periodo de almacenamiento de la muestra después de su irradiación el tiempo de vida de los electrones en trampas profundas es mayor en comparación con los electrones capturados en trampas superficiales.

Como se comentó en la sección 1.2.3 el proceso físico que da lugar a la emisión termoluminiscente (TL) de un sólido está relacionado con el movimiento de portadores de carga (electrones y agujeros) entre diferentes estados de energía debidos a las imperfecciones en la red cristalina del sólido. En un cristal real se tienen varios niveles de atrapamiento, cada uno de ellos debido a un tipo de defecto dentro del cristal o a un complejo de varios defectos. Cada nivel de atrapamiento origina un pico TL el cual puede estar sobre puesto en otro pico de mayor intensidad y no ser apreciado en la curva TL. El número de trampas presentes determina el área bajo la curva y la altura del pico dosimétrico. Dicho número de trampas depende a su vez del número de defectos existentes en la red cristalina asociados con el tipo y cantidad de impurezas presentes, así como del historial térmico del material.[6,26]

El estudio de la cinética del proceso TL implica entonces la investigación de las transiciones electrón-hueco entre estados de energía relacionados con las diferentes imperfecciones (impurezas y defectos) durante la irradiación y la lectura TL de la muestra.

Los diversos fenómenos relativos a la excitación TL y al proceso de lectura se describen con referencia a las transiciones de electrones y huecos entre la banda de valencia y la de conducción del material TL y los estados localizados de los centros de atrapamiento y recombinación. La descripción de estos procesos se lleva a cabo mediante los siguientes parámetros relacionados con las imperfecciones: energía de activación o profundidad de la trampa ( $E$ ), probabilidades de recombinación ( $p$ ), factor de frecuencia o factor pre-exponencial ( $s$ ).

Dichos parámetros determinan el tipo de cinética que se puede esperar, por ejemplo linealidad de la respuesta TL en función de la dosis, dependencia de la rapidez de dosis durante la irradiación y primer orden, segundo orden o cualquier otro tipo de cinética durante la lectura.[18]

Asumiendo trampas para electrones y centros de recombinación para huecos y suponiendo que a una temperatura constante ( $T$ ) se tienen  $n$  electrones excitados, existen dos mecanismos de transición radiativa posibles:

**Cinética de primer orden.** La recombinación es el proceso dominante sobre el reatrapamiento, por lo tanto, existe una probabilidad constante de que el número de electrones excitados disminuya; entonces, si  $p$  denota la probabilidad de que un portador de carga escape de su trampa y  $n$  la concentración de portadores de carga retenidos en las trampas, se tiene:

$$p = \frac{-dn/dt}{n} \text{ o sea } \frac{dn}{n} = -pdt \quad (1.14)$$

entonces  $n$  decae exponencialmente:

$$n = n_0 e^{-pt} \quad (1.15)$$

La intensidad de la respuesta TL está relacionada con la razón de cambio de la concentración de electrones en sus estados excitados, porque es la recombinación de los electrones la que provoca la emisión de luz.

Además la eficiencia en la emisión de luz ( $c$ ) es menor a la unidad, así:

$$I = -c \frac{dn}{dt} \text{ donde } c < 1 \quad (1.16)$$

Entonces  $I$  también decae en forma exponencial por lo tanto tomando  $c=1$ , substituyendo la ecuación 1.15 en la ecuación 1.16 y derivando se tiene:

$$I = n_0 p e^{-pt} \quad (1.17)$$

A partir de los valores iniciales de  $I=I_0$  y  $t=0$  y aplicándolos en la ecuación 1.17 se obtiene  $I_0=n_0p$ ; entonces para una cinética de primer orden se tiene:

$$I = I_0 e^{-pt} \quad (1.18)$$

**Cinética de segundo orden:** En este caso la probabilidad de recombinación es proporcional al número de centros disponibles y se supone que existe un fuerte *retrapamiento*. A partir de la ecuación 1.19 se puede obtener la cinética de segundo orden.

$$p = -\frac{\left(\frac{dn}{dt}\right)}{n^2} \text{ o } \frac{dn}{n^2} = -pdt \quad (1.19)$$

Por lo tanto,  $n$  decae en forma hiperbólica.

$$n = \frac{n_0}{1 + n_0 p t} \quad (1.20)$$

La ecuación de decaimiento de la luminiscencia está dada entonces por:

$$I = -c \frac{dn}{dt} = c p n^2 \quad (1.21)$$

Tomando las condiciones iniciales  $I=I_0$  para  $n_0$  y  $c=1$  se obtiene:

$$I = \frac{I_0}{(1 + at)^2} \text{ donde } a = (I_0 p)^{1/2} \quad (1.22)$$

En una trampa puede haber varios estados excitados por lo tanto, los electrones pueden tener una distribución de energía dentro de dicha trampa, la distribución estadística de los electrones atrapados en estados metaestables se puede considerar como una distribución en equilibrio; es decir, como una distribución de Boltzmann. Por tanto, la probabilidad  $p$  de que un portador de carga escape de la trampa está dado por:

$$p = s \cdot e^{-E/kT} \quad (1.23)$$

donde:

- $s$  factor de frecuencia
- $E$  energía de activación
- $T$  temperatura (K)
- $k$  constante de Boltzmann  
 $1.38 \times 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$   
 $8.617 \times 10^{-5} \text{ eV} \cdot \text{K}^{-1}$

La rapidez con que se liberan los electrones es:

$$\frac{dn}{dt} = -np \text{ es decir } \frac{dn}{dt} = -nse^{-E/kT} \quad (1.24)$$

donde:  $n$  representa la concentración de portadores de carga retenidos en las trampas.

La intensidad de la luz emitida  $I$  es proporcional a la rapidez de recombinación radiativa, es decir:

$$I = -c \frac{dn}{dt} = csne^{-E/kT} \quad (1.25)$$

de la ecuación (1.25) obtenemos:

$$\frac{dn}{n} = -se^{-E/kT} dt \quad (1.26)$$

Si se eleva la temperatura de obtención de la señal TL a una velocidad lineal ( $\beta$ ), dado por:

$$T = T_0 + \beta t \quad \text{o} \quad \beta = \frac{dT}{dt} \quad (1.27)$$

Despejando  $dt$  y sustituyendo en la ecuación (1.26) e integrando, se tiene:

$$\ln \frac{n}{n_0} = \int_{T_0}^T \frac{s}{\beta} e^{-E/kT} dT \quad (1.28)$$

$$n = n_0 \exp\left[-\int_{T_0}^T \frac{s}{\beta} e^{-E/kT} dT\right] \quad (1.29)$$

Esta expresión representa la variación de la densidad de portadores de carga atrapados en función de la temperatura. Si se sustituye en la ecuación 1.25 se obtiene una representación de la curva TL para un nivel único de atrapamiento (un pico en la curva TL).

$$I = cn_0 se^{(-E/kT)} \left[ \exp\left(-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T e^{(-E/kT)} dT\right) \right] \quad (1.30)$$

Para segundo orden se supone que existe un fuerte *reatrapamiento*, entonces:

$$I = -\frac{dn}{dt} = s' n^2 e^{-E/kT} \quad (1.31)$$

$$s' = \frac{s}{n_0} (cm^3 \cdot s^{-1}) \quad (1.32)$$

$$I(t) = s n_0 e^{-E/kT} \left[ 1 + \frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T e^{-E/kT'} dT' \right] \quad (1.33)$$

Considerando una cinética de orden general se obtiene:

$$I = -\frac{dn}{dt} = s' n^b e^{-E/kT} \quad (1.34)$$

$$s' = \frac{s}{n_0^{b-1}} (cm)^{3(b-1)} \cdot s^{-1} \quad (1.35)$$

entonces:

$$I = s n_0 e^{-E/kT} \left[ (b-1) \frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T e^{-E/kT'} dT' + 1 \right]^{-\frac{b}{b-1}} \quad (1.36)$$

La primera exponencial es responsable del crecimiento de la señal y representa la aceleración en la rapidez de liberación de portadores de carga a medida que aumenta la temperatura. La segunda exponencial se origina del decrecimiento de la señal a consecuencia de la disminución en la densidad de portadores de carga en las trampas.

### 1.5.1. Análisis por deconvolución.

Existen diferentes métodos de análisis de las curvas TL para la determinación de la energía de activación en este fenómeno, sin embargo, la mayoría de ellos se basan en la presencia de un solo pico para su análisis, cosa que es muy difícil por la variedad de trampas con diferentes energías presentes en la mayoría de los materiales termoluminiscentes. [26,27]

La deconvolución es un método general permitiendo, en contraste con los métodos experimentales, el ajuste de la curva TL de varios picos en la suma de sus componentes elementales. Una ventaja es la evaluación simultánea de los parámetros de los picos TL sin ningún tratamiento térmico. Para este estudio Chen [28] se basa en ecuación 1.36 para una cinética de orden general:

$$I(T) = \frac{s^* n_0^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[ 1 + \frac{s^* (b-1) n_0^{(b-1)}}{q} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{ku}\right) du \right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (1.37)$$

donde:

- $T_0$  es la temperatura inicial en kelvin
- $T$  es la temperatura en kelvin (variable independiente)
- $k$  es la constante de Boltzmann
- $q$  es la rapidez de calentamiento en kelvin/segundo

Los parámetros a determinar son:

- $s^*$  factor preexponencial ( $\text{cm}^{3(b-1)}/\text{segundo}$ )
- $n_0$  población de electrones atrapados ( $\text{cm}^{-3}$ )
- $b$  orden cinético
- $E$  energía de activación (eV)

Es importante observar que cada uno de los parámetros a determinar en la expresión analítica de Chen no están relacionados en forma explícita con la posición y la altura del pico, por lo que López [29] optó por las siguientes expresiones:

$$I(T) = \frac{sn_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s(b-1)}{q} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{ku}\right) du\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (1.38)$$

donde:  $s = s^* n_0^{(b-1)}$

La expresión anterior está en términos de el factor de frecuencia  $s$ , el número de electrones atrapados inicialmente  $n_0$ , el orden de cinética  $b$  y la energía de activación  $E$ .

$$I(T) = \frac{I_m \exp\left(\frac{E}{kT_m} - \frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \left(1 - \frac{1}{b}\right) \left(\frac{E}{kT_m^2}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(\frac{E}{kT_m} - \frac{E}{ku}\right) du\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (1.39)$$

La expresión 1.39 está en términos de la temperatura donde el pico alcanza su máxima intensidad  $T_m$ , la máxima intensidad TL  $I_m$ , el orden de cinética  $b$  y la energía de activación  $E$ .

$$I(T) = \frac{I_m \exp(W(T - T_m))}{\left[\frac{1}{b} + \left(1 - \frac{1}{b}\right) \exp(W(T - T_m))\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (1.40)$$

donde:  $W = \frac{E}{kT_m^2}$

La ecuación 1.40 es una expresión aproximada a la ecuación 1.39, esta ecuación se obtiene al aproximar el integrando con su serie de Taylor truncada hasta el término de primer orden.[29]

La ecuación 1.40 es más sencilla de evaluar debido a la ausencia de la integral a calcular numéricamente en la ecuación 1.39, además se tiene una relación gráfica con dos de los parámetros proporcionados por la curva TL,  $T_m$  e  $I_m$ , por lo tanto se podrán realizar buenas estimaciones iniciales de estos parámetros a partir de la curva TL de los resultados experimentales.

Con respecto a los parámetros  $b$  y  $E$  se conocen los rangos para obtener éstos valores,  $b$  gobierna los semianchos izquierdo y derecho de los picos en la curva TL y sus valores están comprendidos entre 1 y 2, además se puede iniciar con un valor de 1.5;  $E$  gobierna el ancho total de cada pico con sus valores comprendidos entre 0.5 y 3, este parámetro se puede iniciar con un valor de 1 si el pico es ancho, con un valor de 1.7 o más si el pico es estrecho.

A partir de los parámetros  $T_m$ ,  $I_m$ ,  $b$  y  $E$  se pueden obtener los parámetros:  $s$ ,  $s^*$  y  $n_0$ , es decir, existen funciones para calcular los tres últimos parámetros cuyas reglas de correspondencia dependen de los cuatro primeros.

La deconvolución de la curva TL se realizó mediante el *Software* matemático para la optimización no-lineal con restricciones de desigualdad y de caja, *Fortran 77*, basado en el algoritmo de Programación Cuadrática Secuencial modelo Aproximado, de *Microsoft 77* llamado "PCSDTLA.FOR". Después se procesan los datos obtenidos con el paquete *Excel* y finalmente se obtienen las gráficas en *Origin*, todo esto en una microcomputadora personal.

# CAPÍTULO II: DESARROLLO EXPERIMENTAL.

## 2.1. Materiales y Fuentes de Radiación.

### 2.1.1. Materiales.

El instrumental de laboratorio y los materiales precursores utilizados en la parte experimental se mencionan a continuación:

- Cajas petri
- Termómetros
- Portadosímetros de plexiglás 11x11 cm
- Cronómetro
- Porta dosímetros pequeños de plástico 3x2x0.7 mm
- Crisol de platino
- Crisoles de plata y porcelana
- Tubo de cuarzo
- Agitador
- Fluoruro de Litio (LiF) marca Merck
- Cloruro de Litio (LiCl)
- Cloruro de Magnesio (MgCl<sub>2</sub>)
- Solución de Titanio (Ti en H<sub>2</sub>O)
- Probetas de 10 ml
- Dosímetros TLD 100
- Mortero agata

### 2.1.2. Equipos y fuentes de radiación.

Los equipos para los tratamientos térmicos, secado, lectura termoluminiscente y las fuentes de radiación utilizados en el desarrollo de la investigación se presentan a continuación:

#### Equipos

- Estufa eléctrica marca Rios HB.
- Horno eléctrico marca Lindberg Heavy Duty, modelo 59544, serie 15380.
- Mufra eléctrica marca Thermolyne Sybron 10500 Furnance.
- Analizador de termoluminiscencia Harshaw modelo 4000. En el equipo lector se utilizó una atmósfera inerte con flujo de nitrógeno, para evitar la contribución de señales espurias en las lecturas.
- Una PC, a la cual se acopló el analizador de termoluminiscencia.
- La señal TL se digitaliza por medio de una interface RC232C de dos canales.

#### Fuentes de radiación.

- Irradiador Gamma de <sup>60</sup>Co, marca: Vickers Radiation Division England, modelo: VickRad, serie 2000 con una actividad de 292.18 GBq (7.90 Ci) y una razón de dosis de 11.164 Gy/h.
- Irradiador Gamma de <sup>60</sup>Co, marca: Nordion, Modelo: Gammacell, serie 220 con una actividad de 7.90 TBq (213.51 Ci) y una razón de dosis de 72.355 Gy/h.
- Irradiador Gamma de <sup>137</sup>Cs, marca: J.L. Sheperd and Associates, modelo: 28-6B Calibrator, con una actividad de 42.05 GBq (1.14 Ci) y una tasa de dosis de 2.46 mGy/h.
- Irradiador Gamma de <sup>60</sup>Co, modelo: Transelektro serie LG1-01 con una actividad de y una tasa de dosis 1915.19 Gy/h.

Los dosímetros utilizados en este trabajo se encuentran elaborados en forma de pastillas con una masa promedio de  $17.5 \pm 0.2$ mg y dimensiones 5mm de diámetro y un espesor de 0.45mm. Para poder medir la masa de los dosímetros se utilizó la balanza analítica mostrada en la figura 2.1.



Figura 2.1. Balanza usada para obtener la masa de los dosímetros de LiF:Mg,Ti.

## 2.2. Método de Preparación del Fluoruro de Litio con Distintos Activadores.

Para la síntesis del LiF:Mg,Ti se trituraron 10 gr de LiF puro de la marca ALDRICH en un mortero de ágata hasta obtener un polvo muy fino. Se preparó una solución acuosa de cloruro de magnesio y se incorporó en la matriz de LiF con una concentración de 400 ppm de Mg, posteriormente se agregó la solución de Ti con una concentración desde 15 hasta 120 ppm. La incorporación de las soluciones acuosas con los dopantes de Mg y Ti en el polvo de LiF se realizó a una temperatura de 90 °C agitando de forma uniforme hasta obtener una mezcla homogénea para después dejar enfriar a temperatura ambiente. Una vez enfriada, la mezcla de LiF:Mg,Ti se le agregó 10mol% de LiCl en solución acuosa. Para poder secar totalmente el LiF:Mg,Ti se vació en un crisol de platino y se metió a un horno por 20 hrs a una temperatura de  $85 \pm 5^\circ\text{C}$ . Posteriormente al LiF:Mg,Ti se sometió primero a un tratamiento térmico de  $400^\circ\text{C}$  durante 30 min y en seguida se elevó la temperatura hasta  $850^\circ\text{C}$  en atmósfera inerte manteniéndola a esta temperatura por 30 min en un horno eléctrico vertical. En la Figura 2.2 se observa el tratamiento térmico aplicado a los polvos de LiF:Mg,Ti.

Concluido el tiempo del tratamiento térmico el horno se apaga y se espera hasta que la temperatura baja a  $500^\circ\text{C}$  para retirar inmediatamente el crisol de platino con la muestra, se le agregan unas gotas de agua bidestilada provocando un choque térmico en el material para despegar el material del crisol. Al producto obtenido de LiF:Mg,Ti se tritura en un mortero de ágata y se somete a un proceso de lavado, primero con HCl 1N, después se vuelve a lavar por cinco veces con agua destilada y finalmente con etanol. Posteriormente los polvos de LiF:Mg,Ti se secan en una parilla eléctrica a una temperatura de  $60 \pm 5^\circ\text{C}$  por 30 min. El producto se pulveriza y tamiza con un tamaño de malla entre 80 y 200 para seleccionar los granos con tamaño entre 74 y 177  $\mu\text{m}$ . (Figura 2.3)

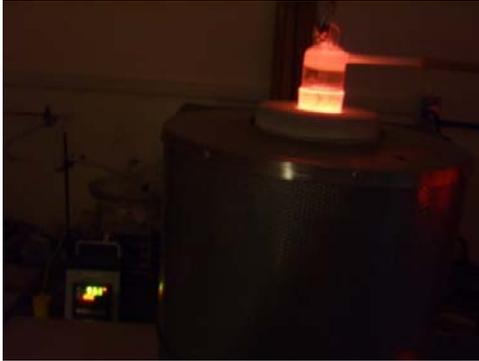


Figura 2.2. Tratamiento térmico en LiF:Mg,Ti.



Figura 2.3. Matraz de ágata con LiF:Mg,Ti en polvo.

## 2.3. Caracterización Morfológica y Estructural.

### Microscopia electrónica de barrido

Para la caracterización morfológica se empleó un microscopio electrónico de barrido (MEB) JEOL modelo LV6300 con detector de rayos X Oxford.

Se tomó una alícuotas en polvos de LiF:Mg,Ti sin tratamiento térmico. Antes de introducir la muestra de LiF:Mg,Ti en el microscopio se le aplicó un recubrimiento de oro para mejorar la conductividad eléctrica del material.

### Difracción de rayos X

Es una de las técnicas más utilizadas para poder obtener las características estructurales de los materiales cristalinos. Cuando un haz de Rayos X incide sobre un cristal los átomos de los planos cristalográficos que lo conforman dispersan al haz incidente, de tal forma que cada átomo produce un fenómeno de interferencia para determinadas direcciones el cual será destructivo o constructivo surgiendo así el fenómeno de difracción. Para poder observar el fenómeno de difracción solo los átomos de los planos cristalográficos que cumplan con la ley de Bragg (ecuación 2.1) contribuyen a formar el patrón de difracción.

$$n\lambda = 2d_{hkl}\text{sen } \theta \quad (2.1)$$

donde:

n es un número entero,

$\lambda$  la longitud de onda del haz de Rayos X,

$d_{hkl}$  distancia entre los planos de la red cristalina y

$\theta$  el ángulo entre el haz incidente y los planos cristalográficos

A partir de la intensidad de reflexión en un difractograma se puede estimar el tamaño de grano mediante la fórmula de Scherre's (ecuación 2.2).

$$D = \frac{0.9\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (2.2)$$

donde:

$D$  es el tamaño de grano,

$\lambda$  es la longitud de onda de los rayos X incidentes,

$\theta$  es el ángulo de Bragg y

$\beta$  es la diferencia de los ángulos a la mitad del pico más intenso del difractograma

La difracción de Rayos X se realizó en un equipo Siemens D-500 utilizando las  $K\alpha_1$  de un blanco de Cu con una longitud de onda de  $\lambda=1.5045e-10$  m, a 40kV y 30mA. Para la identificación cualitativa de fases se emplea la base de datos (PDF).

## 2.4. Caracterización Dosimétrica.

### 2.4.1. Optimización del tratamiento térmico de borrado.

Para la optimización del LiF:Mg,Ti en forma de polvo el tratamiento térmico de borrado a altas temperaturas, se introdujeron alícuotas de material TL en una mufla a 300 o 350 y 400 °C, durante 30min y 1hr respectivamente. También se realizaron tratamientos térmicos a bajas temperaturas por 24hrs a 80°C y 100°C por 1, 2 y 4 hrs. En todos los casos se incorporo como referencia un dosímetro comercial TLD-100, cuyo tratamiento térmico de borrado estándar es de 400 °C por 1hr y seguido de 100 °C por 2hrs [12]. En la figura 2.4 se observa el horno utilizado para los tratamientos térmicos.



**Figura 2.4.** Horno eléctrico usado para los tratamientos térmicos de borrado.

### 2.4.2. Sensibilidad.

Para verificar la sensibilidad de las diferentes preparaciones de LiF:Mg,Ti (0, 15, 30, 60, 90 y 120 ppm Ti) a la radiación se utilizo una fuente de rayos gamma de  $^{60}\text{Co}$ , suministrando una dosis de 100mGy en cada una de las muestras. La sensibilidad se calcula a partir de la relación de la intensidad TL obtenida en la lectura del material y la energía suministrada en el material, ecuación (1.10) de la sección 1.4.1.

$$S = \frac{\text{Intensidad TL}}{\text{Dosis} \times \text{Masa}}$$

### 2.4.3. Respuesta en función de la concentración del dopante.

Se tomaron pequeñas alícuotas de polvo de LiF:Mg,Ti (0, 15, 30, 60, 90 y 120 ppm Ti), sometidas al tratamiento térmico de borrado antes mencionado a 400 °C por 1hr seguidas de 100 °C por 2hr, las muestras se irradiaron en una fuente de <sup>60</sup>Co con una dosis de 1 Gy, las lecturas se tomaron un día después de la irradiación. Las características de lectura utilizadas en el equipo Harshaw TLD-400 son las siguientes: una velocidad de calentamiento de 10°C/s, un precalentamiento de 100°C, una temperatura máxima de 300°C y un tiempo de adquisición de 20s.

### 2.4.4. Elaboración de pastillas.

Para conseguir un mejor manejo del polvo del LiF:Mg,Ti en el proceso de irradiación, lectura y borrado se elaboraron dosímetros en forma de pastilla usando Politetrafluoretileno (PTFE) como aglutinante en una proporción 3:2. Esto se realizó a los polvos de LiF:Mg, LiF:Mg, Ti (30 y 60ppm) presentaron una buena sensibilidad y una curva TL óptima. Para obtener las pastillas se preparó una mezcla de LiF:Mg,Ti y PTFE a temperatura de nitrógeno líquido, con una cucharilla de vidrio se coloca una pequeña cantidad de la mezcla en una matriz de acero inoxidable en forma circular y con la ayuda de una prensa hidráulica se aplica una presión de aproximadamente 50 MPa. Las pastillas obtenidas tienen unas dimensiones de 5mm de diámetro por 0.45 mm de espesor y una masa promedio aproximada de 17.5±0.2 mg. Finalmente los pastillas se sometieron a un tratamiento térmico de sinterizado con el fin de aumentar la resistencia para permitir su fácil manipulación en los experimentos posteriores. En la figura 2.5 se observan las pastillas obtenidas después del proceso de sinterizado.

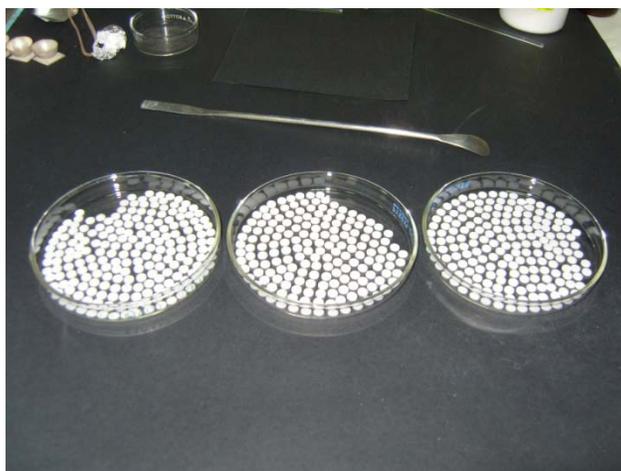


Figura 2.5. Dosímetros en forma de pastillas de LiF:Mg,Ti.

### 2.4.5. Homogeneización por lotes de los dosímetros LiF:Mg,Ti+PTFE.

Para este experimento los dosímetros se sometieron a un tratamiento térmico de borrado que consistió en calentar a 350 °C por 30 minutos, seguido de 100°C durante 2 horas, considerando este tratamiento como el tratamiento estándar de borrado para pastillas. Los dosímetros se llevaron a irradiar en una fuente de  $^{60}\text{Co}$  a una dosis de 25 mGy, posteriormente se almacenaron en un cuarto oscuro por 24 hrs. Después de ese tiempo se tomaron las lecturas de los dosímetros con una rapidez de calentamiento de 10°C/s, un precalentamiento de 100 °C, una temperatura máxima de 300 °C y un tiempo de adquisición de 20 segundos. Con los resultados obtenidos se homogeneizaron los dosímetros, esto se realizó considerando solamente un error del 5% en la respuesta TL. Las lecturas se llevaron a cabo en el equipo lector TLD-4000 mostrado en la Figura 2.6.



Figura 2.6. Detector Harshaw 4000 utilizado para tomar la lectura de los dosímetros.

Para homogeneización de dosímetros en forma de pastilla para las preparaciones se emplea la siguiente expresión [1]:

$$\frac{D_{max} - D_{min}}{D_{min}} \leq 0.3$$

donde:

$D_{max}$  = Dosis máxima

$D_{min}$  = Dosis mínima.

### 2.4.6. Reproducibilidad de la respuesta TL.

Para realizar la prueba de reproducibilidad en la respuesta TL a la radiación ionizante, se selecciono un dosímetro de cada una de las preparaciones de LiF:Mg,Ti+PTFE con una concentración de 0, 30 y 60 ppm de Ti, para evitar errores por variación en sensibilidad por efecto de la masa se sometieron a un tratamiento estándar de borrado, después se dejaron enfriar hasta temperatura ambiente y se procedió a irradiarlos simultáneamente con radiación gamma proveniente de una fuente de  $^{60}\text{Co}$  a una dosis de 25 mGy. La prueba se realizó por diez ciclos consecutivos, de borrado, irradiación y lectura. Las irradiaciones se llevaron a cabo en condiciones de equilibrio electrónico o factor build up para evitar variaciones en las lecturas TL. [9]

La reproducibilidad de la respuesta TL en función de la dosis absorbida, se evaluó de acuerdo con la siguiente ecuación [1]:

$$100 \frac{SD}{\bar{x}} \leq 7.5\%$$

### 2.4.7. Respuesta en función de la dosis absorbida.

Se utilizaron los polvos y las pastillas de LiF:Mg y LiF:Mg, Ti (15 ,30 ,60 , 90 y 120ppm Ti), en el presente trabajo solo se reportarán la respuesta TL en función de la dosis absorbida para pastillas. La preparación de los polvos para el proceso de irradiación se menciona a continuación:

Antes de cada irradiación se tomaron alícuotas de polvos de LiF:Mg,Ti y se colocaron en recipientes de plata para darles un tratamiento térmico de borrado estándar (400 °C por 1hr y 100 °C por 2hrs) con el propósito de eliminar cualquier contribución del proceso previo de irradiación en la respuesta TL. Una vez terminado el borrado los polvos se colocaron en pequeñas capsulas para ser irradiados como se muestra en la tabla 2.1.

En el caso de las pastillas se seleccionaron 26 de LiF:Mg,Ti+PTFE y 26 dosímetros de TLD-100 para someterlos a un tratamiento térmico de borrado (350°C por 1hr y 100°C por 2hrs). El tratamiento térmico en las pastillas difiere del tratamiento en los polvos para evitar posibles daños en el teflón (PTFE) por causa de la temperatura. Después del tratamiento térmico se colocaron 4 dosímetros; 2 dosímetros de cada preparación de LiF:Mg,Ti + PTFE (0, 15, 30, 60, 90 y 120 ppm de Ti) y 2 dosímetros TLD-100; en 7 contenedores de plexiglás de 3mm de espesor y con capacidad para 8 dosímetros (Figura 2.7). Los contenedores con los dosímetros se irradiaron con diferentes fuentes de radiación a diferentes dosis como se observa en la tabla 2.1. Finalmente las lecturas termoluminiscentes se de cada una de las muestras se realizaron un día después de la irradiación.

**Tabla 2.1.** Fuentes de radiación gamma e intervalos de dosis utilizadas en la experimentación.

Dosis bajas	<ul style="list-style-type: none"> <li>✓ Irradiador Gamma de <sup>60</sup>Co VickRad. Intervalo de dosis: 0.01Gy, 0.25Gy, 0.5 Gy, 0. 1 Gy, 0.5 Gy, 1Gy 2.5Gy. Propiedad del ININ.</li> <li>✓ Irradiador Gamma de <sup>137</sup>Cs. Intervalo de dosis: 0.1 mGy, 0.25m Gy, 1mGy, 2.5mGy, 5 mGy y 10 mGy. Propiedad de la CNSNS.</li> </ul>
Dosis Medias	<ul style="list-style-type: none"> <li>✓ Irradiador Gamma de <sup>60</sup>Co Gammacell. Intervalo de dosis: 5Gy, 10Gy, 25Gy y 50Gy. Propiedad ININ.</li> </ul>
Dosis Altas	<ul style="list-style-type: none"> <li>✓ Irradiador Gamma de <sup>60</sup>Co Transelektro. Intervalo de dosis: 100Gy, 250Gy, 500Gy y 1000Gy. Propiedad ININ.</li> </ul>



Figura 2.7. Porta dosímetro de plexiglás.

#### 2.4.8. Umbral de detección.

Se seleccionaron 10 dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE con diferentes concentraciones de Ti (0, 30 y 60 ppm) para poder determinar el umbral de detección. A estos dosímetros se les suministro un tratamiento estándar de borrado, después se dejaron enfriar a temperatura ambiente e inmediatamente se realizaron sus lecturas TL de fondo. Las lecturas obtenidas se extrapolaron en la curva de calibración de cada una de las preparaciones y así obtener las dosis correspondientes. Con los valores extrapolados se determinó el umbral de detección de acuerdo con la siguiente expresión (2.3):

$$t * SD \leq 0.1mGy \quad (2.3)$$

donde:

$t$  es la t-student para n-1 grados de libertad (= 2.6222 para 95 % de nivel de confianza)

SD es la desviación estándar expresada en unidades de dosis.

#### 2.4.9. Desvanecimiento de la información TL (fading).

Para determinar el desvanecimiento de la señal TL en función del tiempo de pos-irradiación, se tomaron pequeñas cantidades de polvo de LiF:Mg,Ti (0, 30 y 60 ppm de Ti) y se colocaron en crisoles de plata para darles un tratamiento térmico de borrado a 400°C por 1hr seguido de 100°C por 2hrs, posteriormente fueron colocados en capsulas y se irradiaron a una dosis de 100mGy con radiación gamma de <sup>60</sup>Co. Las muestras irradiadas se guardaron a temperatura ambiente protegidas de la luz. Las lecturas TL se tomaron desde 1, 17, 33, 49, 64 y 96 días después de la irradiación. La señal TL se adquirió desde 100°C a 300°C con una rapidez de calentamiento de 10°C/s, un tiempo de adquisición de 20s y con atmosfera inerte de gas nitrógeno.

#### 2.4.10. Efecto de la humedad en los dosímetros.

Para cada preparación de LiF:Mg,Ti (0, 30 y 60 ppm de Ti) realizada se seleccionó una pastilla para someterlas primero a un proceso de borrado térmico, enseguida se irradiaron a una dosis de 100mGy en un equipo VicKrad. Las lecturas TL de las pastillas se midieron 30min después de la irradiación y se pesaron 3 veces cada una para obtener su masa promedio. Una vez obtenidas las lecturas TL las pastillas se colocaron en agua durante 24 hrs, después de este periodo de tiempo las pastillas se dejan secar sobre un papel durante 2min para iniciar nuevamente con el proceso de borrado, irradiación, lectura y humedad.

### 2.5. Determinación de los Parámetros Cinéticos de la Curva TL por Deconvolución.

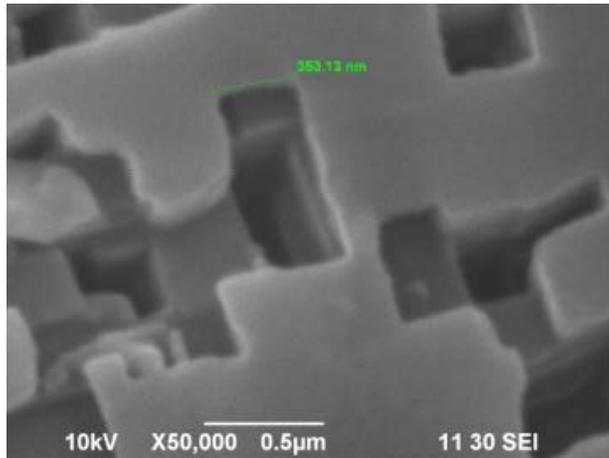
Para determinar los parámetros cinéticos de la curva TL se tomaron alícuotas de polvo de las siguientes preparaciones de LiF:Mg, LiF:Mg,Ti (60 ppm Ti) y TLD-100, estas alícuotas fueron sometidas a un tratamiento térmico de 400°C, además se irradiaron con fuente VickRad de <sup>60</sup>Co a una dosis 1Gy, después de este proceso se tomaron las lecturas TL de los polvos con una rapidez de calentamiento de 2°C/s, un precalentamiento de 60°C, una temperatura máxima de 300 °C y un tiempo de adquisición de 120 segundos.

La deconvolución de la curva TL se realizó con la ayuda de un software en Fortran 77 basado en el algoritmo de programación cuadrática secuencial llamado PCSDTLA.FOR para la optimización de los picos TL. Los datos obtenidos fueron procesados en el paquete Microsoft Excel y origin.

# CAPÍTULO III: RESULTADOS

### 3.1. Caracterización Morfológica y Estructural.

En la figura 3.1 se observa la micrografía obtenida del LiF:Mg,Ti sintetizado a una concentración de 400 ppm de Mg y 30 ppm de Ti. El material presenta un crecimiento en capas homogéneas con poros muy bien definidos de forma rectangular y un tamaño promedio aproximado de 272.5nm.



**Figura 3.1.** Micrografía de LiF:Mg,Ti (400 ppm de Mg, 30 ppm de Ti).

Mediante la técnica de difracción de rayos X (DRX) (figura 3.2) se identificó cualitativamente la fase cristalina del material con la ayuda de la base de datos power diffraction file (PDF). El LiF:Mg,Ti presenta un sistema cristalográfico cúbico centrado en las caras con un parámetro de celda de 4.2 Å. A partir de la reflexión más intensa (200) en el patrón de difracción y aplicado la fórmula de Scherrer (ecuación 2.2) se obtuvo el tamaño de grano con un promedio estimado de 64.6nm.

Los cálculos para el pico más intenso que corresponde a los siguientes datos:

$$I_M = 7467 \text{ a } 2\theta = 45.067$$

$$\frac{I_M}{2} = \frac{7467}{2} = 3733.5 \text{ y } \theta = \frac{45.067}{2} = 22.533$$

Los valores de  $2\theta$  a la mitad de la intensidad son:

$$2\theta_1 = 44.986 \text{ y } 2\theta_2 = 45.128$$

$$\beta = 2\theta_2 - 2\theta_1 = 45.128 - 44.986 = 0.142$$

$$\beta_{rad} = \frac{0.142 * 2\pi}{360} = 0.0024$$

Aplicando la fórmula de Scherrer:

$$L = \frac{0.93 * \lambda}{\beta_{rad} * \cos \theta} = \frac{0.93 * 1.54e^{-10}}{0.0024 * \cos (22.533)} = 6.460x10^{-8} = 64.60x10^{-9}m$$

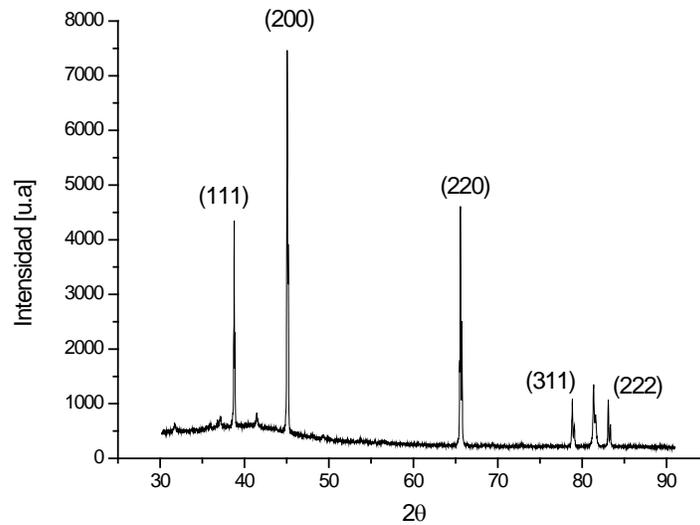


Figura 3.2. Difractograma de LiF:Mg,Ti (400 ppm de Mg, 30 ppm de Ti).

Los picos observados en el patrón de rayos x corresponden con las reflexiones de los planos cristalográficos (111), (200), (220), (311) y (222) localizados a un ángulo  $2\theta$  de 38.7, 44.9, 65.5, 78.7 y 83.2° respectivamente.

### 3.2. Características Dosimétricas.

#### 3.2.1. Respuesta en función de la concentración del dopante.

Con el fin de obtener la respuesta TL en función de la concentración de impurezas de Ti los polvos de LiF:Mg,Ti se irradiaron a una dosis de 1 Gy con radiación gamma de  $^{60}\text{Co}$ . En la figura 3.3 se observa la concentración de las impurezas de Ti versus respuesta TL. Al incrementarse la concentración de Ti se incrementa significativamente la intensidad TL del LiF:Mg,Ti en comparación con el LiF:Mg, la intensidad TL aumenta, hasta una concentración de 90 ppm, para después disminuir con una concentración de 120 ppm de Ti.

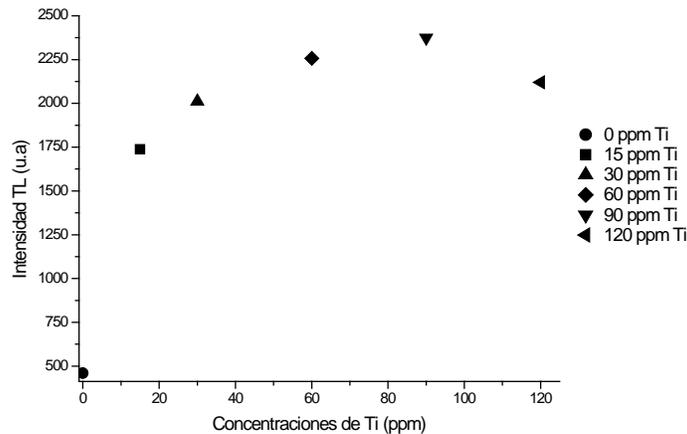


Figura 3.3. Intensidad TL para las diferentes concentraciones.

En la tabla 3.1 se realiza una comparación de la respuesta TL y la intensidad TL del pico dosimétrico entre el LiF:Mg,Ti sintetizado a diferentes concentraciones de Ti (0, 30, 15, 60, 90 y 120 ppm) y el TLD-100 en polvo. La respuesta TL del dosímetro convencional es inferior en comparación con las concentraciones de 60, 90 y 120 ppm, siendo la de 90 ppm con mejor respuesta TL. Por otra parte la intensidad TL del pico dosimétrico es mayor en la concentración de 60 ppm esto es debido principalmente a la contribución de los picos a bajas temperaturas en la concentración de 90 ppm en comparación con los picos en la concentración de 60 ppm de Ti.

**Tabla 3.1.** Comparación de la respuesta TL para diferentes concentraciones de Ti.

Concentración de Ti	Respuesta Termoluminiscente (nC)	Intensidad Pico Dosimétrico (nC)
0 ppm Ti	459.33	104770
15 ppm Ti	1738.26	397580
30 ppm Ti	2011.47	312240
60 ppm Ti	2257.08	500518
90 ppm Ti	2374.43	490480
120 ppm Ti	2120.68	438080
TLD-100	2084.36	417030

### 3.2.2. Optimización del tratamiento térmico.

Para establecer el tratamiento térmico de borrado optimo para los polvos de LiF:Mg,Ti se tomó una alícuota de la muestra con una concentración de 30 ppm de Ti y se sometió a distintas temperaturas con diversos intervalos de tiempo como se muestra en la tabla 3.2:

**Tabla 3.2.** Diferentes tratamientos térmicos del LiF:Mg,Ti.

Tratamiento Termico °C	Intensidad TL (nC)	Sensibilidad (nC/mg*mGy)	Sensibilidad Relativa*
300°C por 30min	308.6	0.178	1.011
300°C por 1hr	299.02	0.173	0.982
350°C por 30min	249.49	0.144	0.818
350°C por 1hr	292.47	0.169	0.960
400°C por 1hr (TLD-100)	304.69	0.176	1

(\*) Asumimos que la sensibilidad del TLD-100 es igual a la unidad y la masa promedio del polvo es de 0.01725 = 17.25 mg

A partir de la información de la tabla 3.2 se da un tratamiento de 300°C por 30min al LiF:Mg,Ti ( 30 ppm Ti) se obtuvo una mayor respuesta TL en comparación con los otros tratamientos térmicos aplicados en el mismo material en comparación con la respuesta TL de un dosímetro convencional TLD-100, por lo tanto el LiF:Mg,Ti es más sensible que el TLD-100 utilizado ampliamente en dosimetría de la radiación.

Las curvas TL para los distintos tratamientos térmicos se muestran en la figura 3.4 si se dan tratamientos térmicos de 300°C por 30min se observa una intensidad más grande en los picos por debajo de los 200 °C y el pico dosimétrico aparece 226°C, para el tratamiento térmico de 350°C por 30 minutos, se observan los picos a bajas temperaturas poco intensos y el pico dosimétrico se encuentra a 235°C aproximadamente.

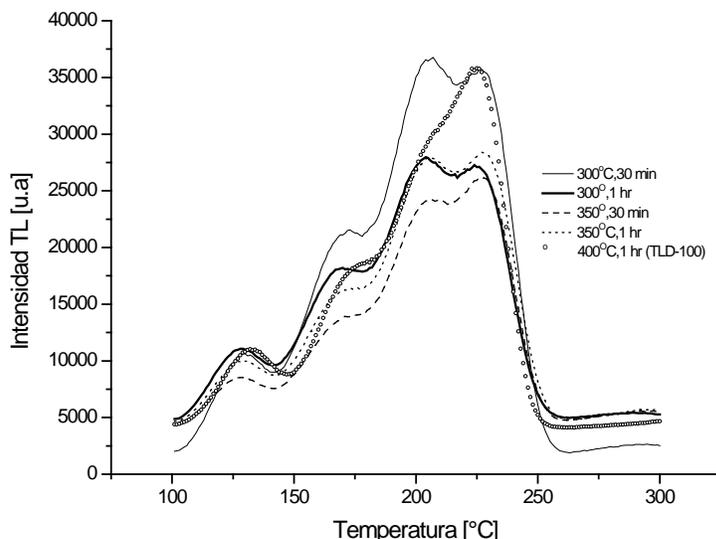


Figura 3.4. Intensidad TL con distintos tratamientos térmicos de LiF:Mg,Ti.

También se observa la similitud en la posición de los picos para el TLD-100 con un tratamiento térmico estándar y para el LiF:Mg,Ti sintetizado con un tratamiento de 300°C por 1hr, en el caso de las intensidades TL la respuesta del material sintetizado es mayor y se puede considerar el tratamiento térmico de 300°C por 30min como óptimo para obtener una buena respuesta TL debido principalmente a la contribución de los picos a bajas temperaturas por que en el caso de la pérdida de información por desvanecimiento los picos a bajas temperaturas disminuirán considerablemente dejando integro el pico dosimétrico a 226°C en comparación con el TLD-100.

En la tabla 3.3 se presentan diversos tratamientos térmicos complementarios, además se determinó la sensibilidad relativa considerando al TLD-100 con una sensibilidad de uno, las lecturas se tomaron un día después de irradiar a los materiales con una dosis de 100mGy.

Tabla 3.3. Tratamientos térmicos complementarios en el LiF:Mg,Ti y TLD-100.

Tratamiento Termico (°C)	Intensidad TL (nC)	Sensibilidad (nC/mg*mGy)	Sensibilidad Relativa*
400°C 1hr, 100°C 2hr (ININ)	169.36	0.098	0.7
400°C 1hr, 100°C 2hr (TLD-100)	220.42	0.127	1
350°C 30min, 80°C 24hr	180.85	0.104	0.8
350°C 30min, 100°C 2hr	156.82	0.09	0.7

(\*) Asumimos que la sensibilidad del TLD-100 es igual a la unidad.

Se observa la comparación de las intensidades TL entre los diversos tratamientos térmicos en el LiF:Mg,Ti y el TLD-100, la intensidad TL es mayor para el TLD-100 así como las sensibilidades. En el caso del material sintetizado se tiene una sensibilidad relativa mayor para el tratamiento térmico de 350°C por 30min, seguido del tratamiento de 80°C por 24 hrs.

Las curvas TL para los distintos tratamientos térmicos adicionales se muestran a continuación en la figura 3.5. En las curvas se observa una disminución de intensidad considerable en los picos a bajas temperaturas dejando prácticamente solo al pico dosimétrico, para el caso de los tratamientos térmicos de 350°C por 30 min seguido de otros de 80 y 100°C por 24hrs la intensidad TL es muy baja en comparación con las demás muestras, por lo

tanto otro tratamiento térmico óptimo a considerar para el caso de los materiales sintetizados es el de 400°C por 1hr seguido de 100°C por 2hrs debido a la formación de una buena curva TL pero con la desventaja principal de disminuir la sensibilidad respecto al dosímetro convencional TLD-100.

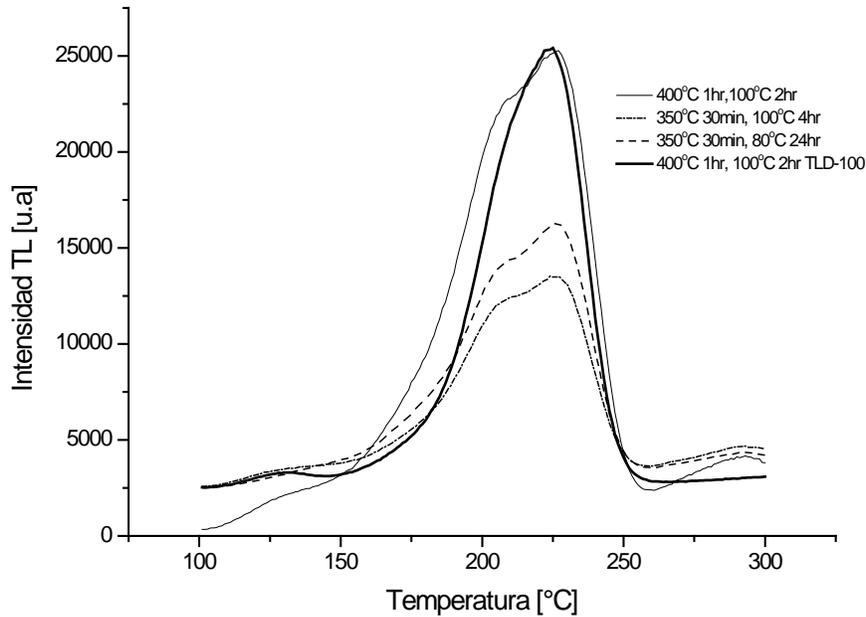


Figura. 3.5. Tratamientos térmicos adicionales de LiF:Mg,Ti.

La figura 3.6 presenta la curva de LiF:Mg (0 ppm de Ti) obtenida inmediatamente después de haber sido irradiada de la misma forma del LiF:Mg,Ti y el TLD-100, se observa la formación de cuatro picos termoluminiscente, tres apenas perceptibles a temperaturas de 110, 150 y 188°C y el pico dosimétrico de mayor intensidad a 240°C aproximadamente. Los picos a bajas temperaturas son poco intensos desvaneciéndose a los pocos minutos después de la irradiación, además la pérdida de información a temperatura ambiente es despreciable para aplicaciones dosimétricas, por lo tanto se presenta la formación de una curva TL con un solo pico dosimétrico que facilita la integración bajo la curva y así poder obtener con mayor facilidad la dosis absorbida por el material.

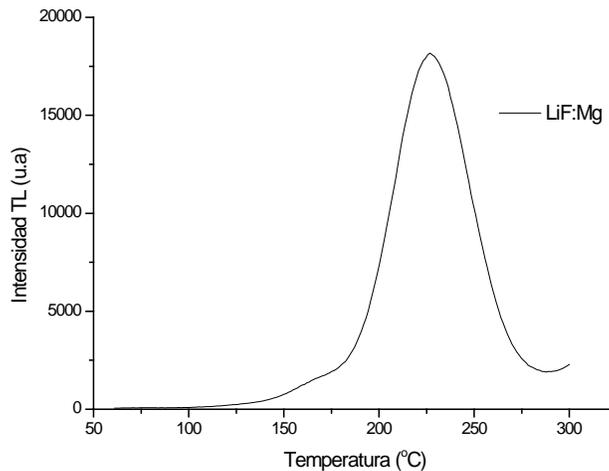


Figura 3.6. Curva TL del LiF:Mg.

A los polvos de LiF:Mg,Ti con una concentración de 60 ppm de Ti y TLD-100 se les dio un tratamiento térmico inicial a una temperatura de 400°C, después se irradiaron a una dosis de 1Gy en una fuente de <sup>60</sup>Co. En la figura 3.7 se observa la curva TL compuesta por cinco picos termoluminiscentes a temperaturas de 110, 151, 188, 222 y 285°C para el LiF:Mg,Ti y 114, 153, 187, 214 y 284°C para el TLD-100 aproximadamente. Los picos termoluminiscentes a bajas temperaturas contribuyen de manera significativa en la curva TL del TLD-100 en comparación con la respuesta TL en el LiF:Mg,Ti sintetizado donde el pico a 222 °C (pico dosimétrico) contribuye mejor a la respuesta TL.

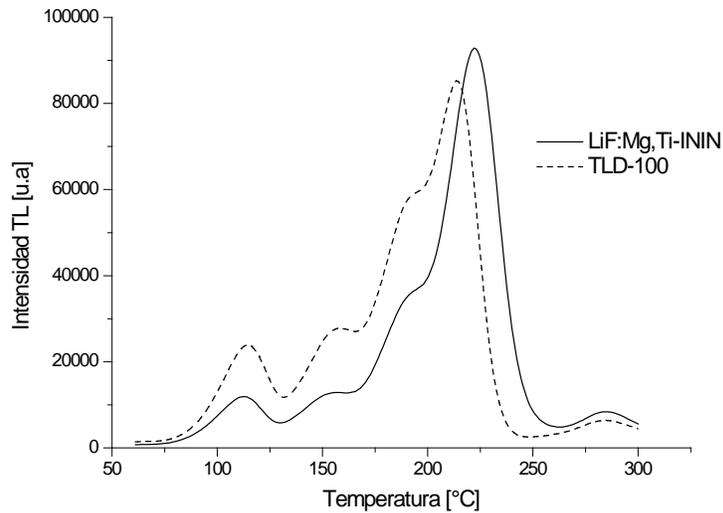


Figura 3.7. Curvas TL del LiF:Mg,Ti (60 ppm de Ti) y TLD-100.

### 3.2.3. Sensibilidad.

En la tabla de 3.4 se reporta la sensibilidad de los polvos de LiF:Mg,Ti, LiF:Mg y del TLD-100 en función de la concentración de los dopantes (0, 15, 30, 60, 90, 120 ppm de Ti) y del tratamiento térmico de 400°C por 1hr seguido de 100°C por 2hrs aplicados en todos los materiales, también las muestras se irradiaron en una fuente de <sup>60</sup>Co a una dosis de 1Gy, las lecturas se realizaron en atmosfera inerte con una rapidez de calentamiento de 20°C/s y con un rango de adquisición desde 100 hasta 300°C. La masa promedio de los polvos de LiF:Mg,Ti fue de 17.25mg.

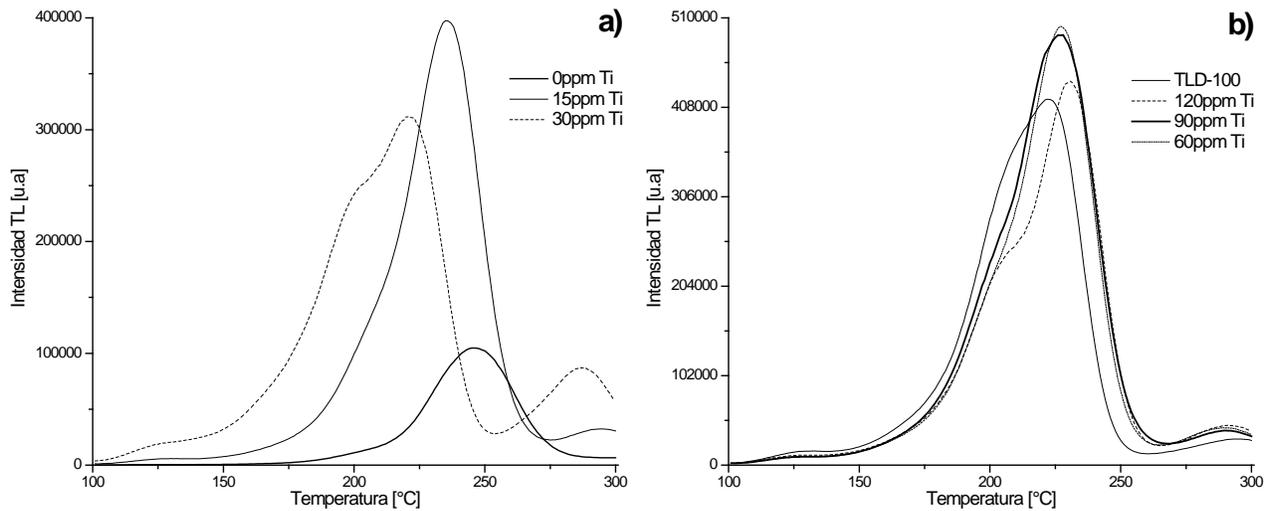
Para el cálculo de la sensibilidad en todas las mediciones se utilizo la ecuación 1.10 de la sección 1.4.1:

$$S = \frac{\text{Intesidad TL (nC)}}{\text{masa (mg)} \times \text{dosis TL (mGy)}}$$

En la tabla 3.4 se muestra la sensibilidad en el LiF:Mg,Ti con diferentes concentraciones de impurezas de Ti y en el TLD-100, las concentraciones con 60, 90 y 120 ppm de Ti presentaron una sensibilidad más alta en comparación con la respuesta del TLD-100, siendo la de 60 ppm con la mejor sensibilidad a la radiación. Sin embargo las curvas TL para las concentraciones de 60 y 90 ppm son muy similares (figura 3.8b) en forma e intensidad TL, diferenciándose solo en pequeñas variaciones en el ancho y la altura del pico dosimétrico, para las curvas TL de 120ppm y TLD-100 son muy diferentes tanto en intensidad como en forma de la curva TL. En la figura 3.8a se observan las diferencias en intensidad y forma de la curva TL para las concentraciones de 0, 15 y 30 ppm de Ti.

**Tabla 3.4.** Sensibilidad de las diferentes concentraciones del LiF:Mg,Ti y LiF:Mg

Lote	Concentración	Intensidad TL (nC)	Sensibilidad (nc/mg*mgy)	Sensibilidad Relatividad*
LiF:Mg	0 ppm Ti	459.33	0.0266	0.219
LiF:Mg,Ti	15 ppm Ti	1738.26	0.1007	0.829
LiF:Mg,Ti	30 ppm Ti	2011.47	0.1166	0.960
LiF:Mg,Ti	60 ppm Ti	2257.08	0.1308	1.077
LiF:Mg,Ti	90 ppm Ti	2374.43	0.1376	1.133
LiF:Mg,Ti	120 ppm Ti	2120.68	0.1229	1.012
TLD-100	N/A	2095.48	0.1214	1.00



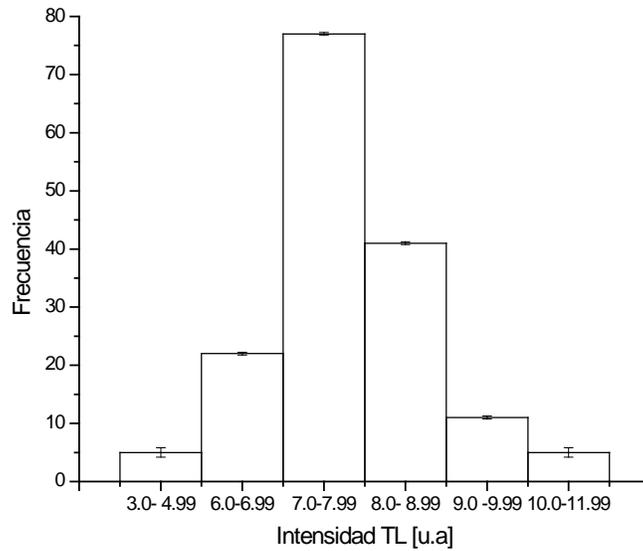
**Figura 3.8.** Curvas TL de las diferentes concentraciones del LiF:Mg,Ti.

### 3.2.4. Homogeneización por lotes de los dosímetros LiF:Mg,Ti+PTFE.

Para obtener una buena homogeneización del LiF:Mg+PTFE se tomaron las lecturas de los 161 dosímetros, los cuales fueron irradiados con una fuente de <sup>60</sup>Co, se agruparon como se muestran en la Tabla 3.5 en función del intervalo y la frecuencia de lecturas obtenidas de los 161 dosímetros estudiados.[1] La mayor frecuencia en la medidas obtenidas se presenta en un intervalo de lecturas TL desde 7.0 hasta 7.99 nC. En la figura 3.9 se observa el histograma de los datos de la tabla 3.5 mostrando una distribución en las medidas uniformes.

**Tabla 3.5.** Intervalo de respuesta TL y frecuencia del LiF:Mg+PTFE (400 ppm Mg).

Intervalo de Lectura TL	Frecuencia
3.0 – 4.99	5
6.0 – 6.99	22
7.0 – 7.99	77
8.0 – 8.99	41
9.0 – 9.99	11
10.0– 11.99	5
Promedio de lecturas $x = 7.72$	
Desviación estándar DS = 1.15	



**Figura 3.9.** Histograma de las pastillas del LiF:Mg+PTFE.

Para la caracterización dosimétrica, fue suficiente con elegir el lote de dosímetros con la mayor frecuencia obtenida, del lote inicial de 161 se seleccionaron los 77 dosímetros cuya respuesta se encuentra en el intervalo intensidad TL de 7 a 7.9. Se evaluaron las lecturas de dichos dosímetros en la curva de calibración para radiación gamma de <sup>137</sup>Cs previamente elaborada y de esta manera obtener la dosis correspondiente de cada lectura TL. Las dosis máxima y mínima evaluadas en la ecuación 1.11 fueron de 26.13mG y 22.5mGy respectivamente para obtener el porcentaje máximo de error para cada dosímetro seleccionado.

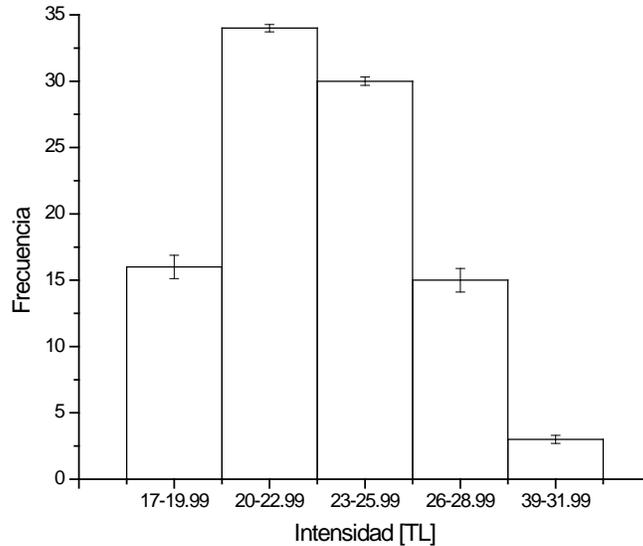
$$\frac{D_{max} - D_{min}}{D_{min}} \leq 0.3 \quad \frac{26.13 - 22.51}{22.51} \leq 0.3 \quad 0.16 \leq 0.3$$

Por lo tanto para el lote de 77 dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE la respuesta individual de cada dosímetro no debe diferir por más del 16% de la respuesta TL de otro dosímetro de este mismo lote, cumpliendo así con los requisitos mínimos para ser empleado en dosimetría personal y ambiental.

Para homogenizar el lote LiF:Mg,Ti+PTFE (400 ppm de Mg, 30 ppm de Ti) se tomaron lecturas de 98 dosímetros los cuales fueron irradiados con una fuente de <sup>60</sup>Co en la tabla 3.6 se muestra el intervalo y la frecuencia de lecturas obtenidas de los 98 dosímetros irradiados, donde se observa una mayor frecuencia en el intervalo desde 20 a 22.9 y también se tiene una desviación estándar del 3.27%. En la figura 3.10 se observa el histograma de las lecturas de la tabla 3.6 mostrando poca uniformidad en la distribución de las lecturas TL obtenidas.

**Tabla 3.6.** Intervalo de respuesta TL y frecuencia LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm Ti).

Intervalo de Lectura TL	Frecuencia
17.0-19.9	16
20.0-22.9	34
23.0-25.9	30
26.0-28.9	15
29.0-31.9	3
Promedio de Lecturas $\bar{x}$ =23.26    Desviación estándar DS=3.27	



**Figura 3.10.** Histograma de las pastillas del LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti).

Se eligió el lote de dosímetros con la mayor frecuencia (34 dosímetros), cuya respuesta se encuentra en el intervalo de 20 a 22.9. La dosis máxima y mínima obtenidas fueron de 62.42mGy y 8.90mGy respectivamente, estas dosis se introdujeron en la ecuación 1.11 para calcular el porcentaje de error en las pastillas de LiF:Mg,Ti. El cálculo del porcentaje se muestra a continuación:

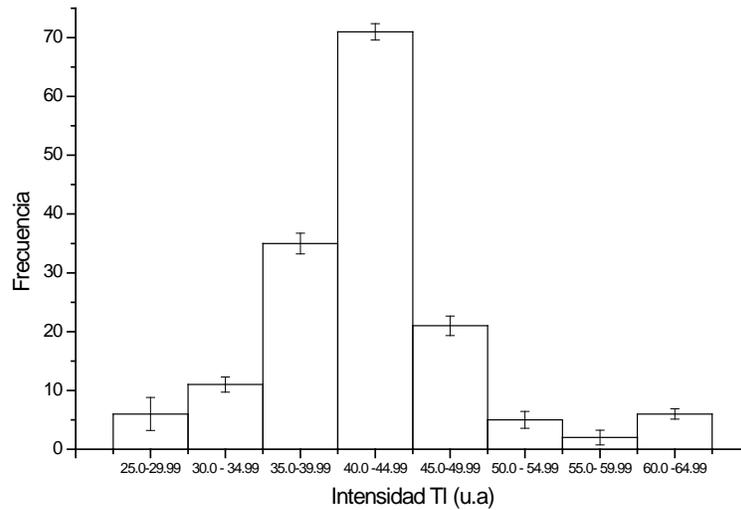
$$\frac{62.42 - 48.90}{48.90} \leq 0.3 \quad 0.27 \leq 0.3$$

Se obtuvo un porcentaje de error del 27% en el lote de dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE con una concentración de 30 ppm de Ti, es decir la diferencia máxima en la respuesta TL de dos dosímetros de este lote no debe ser mayor al 27 %.

Para la concentración de 60ppm de Ti del LiF:Mg,Ti se tomaron las lecturas TL a 161 dosímetros irradiados previamente con una fuente de <sup>60</sup>Co, los resultados se observan en la tabla 3.7 donde se muestra el intervalo y la frecuencia de lecturas obtenidas en los dosímetros elaborados. Para este lote de dosímetros se obtuvo una desviación estándar del 7.47% muy por encima de los datos reportados anteriormente. En la figura 3.11 se observa el histograma correspondiente a este lote de dosímetros de LiF:Mg,Ti.

**Tabla 3.7.** Intervalo de respuesta TL y frecuencia LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti).

Intervalo de Lectura TL (nC)	Frecuencia
25.0-29.9	6
30.0-39.9	11
35.0-39.9	35
40.0-44.9	71
45.0-49.9	21
50.0-54.9	5
55.0-59.9	2
60.0-64.9	6
Promedio de Lecturas $\bar{x}$ = 42.49	
Desviación estándar DS = 7.47	



**Figura 3.11.** Histograma de las pastillas del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti).

El intervalo de confianza para este lote es el de 40 a 44.9 con 71 dosímetros, las dosis máxima y mínima obtenidas y evaluadas en la ecuación 1.11 fueron de 32.24mGy y 28.04mGy, los resultados obtenidos se muestran a continuación:

$$\frac{32.24 - 28.04}{28.04} \leq 0.3 \quad 0.14 \leq 0.3$$

Por lo tanto para los 71 dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE ( 60 ppm de Ti) las lecturas TL no difieren del 16% de error en las mediciones de dos muestras del mismo lote.

### 3.2.5. Reproducibilidad de la respuesta TL.

Los resultados obtenidos para la reproducibilidad de la respuesta TL de los dosímetros de LiF:Mg+PTFE, LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti) y LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti) se observan en la tabla 3.8 donde se muestran los valores promedio de la respuesta TL, el promedio de la sensibilidad obtenida para cada lote y la desviación estándar (DS) de los datos obtenidos. Todos los dosímetros se irradiaron simultáneamente con una fuente de radiación gamma de <sup>60</sup>Co a una dosis de 25mGy.

**Tabla 3.8.** Reproducibilidad de la respuesta TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (0, 30 y 60 ppm de Ti).

Ciclos	LiF:Mg		LiF:Mg,Ti (30 ppm de Ti)		LiF:Mg,Ti (60 ppm de Ti)	
	Intensidad TL	Sensibilidad (nC/mg*mGy)	Intensidad TL	Sensibilidad (nC/mg*mGy)	Intensidad TL	Sensibilidad (nC/mg*mGy)
1	10.2	0.0406	72.41	0.3122	71.11	0.2819
2	10.64	0.0431	74.87	0.3289	71.61	0.2892
3	10.25	0.0412	71.21	0.3104	68.59	0.2749
4	10.14	0.0412	72.23	0.3185	69.27	0.2808
5	10.35	0.0419	71.39	0.3139	67.91	0.2743
6	10.22	0.0414	70.15	0.3082	67.72	0.2735
7	10.54	0.0424	70.49	0.3074	68.41	0.2742
8	10.27	0.0419	71.43	0.3162	69.82	0.2841
9	10.43	0.0423	69.53	0.3064	68.4	0.2762
10	10.69	0.0438	69	0.3066	68.99	0.2818
$\bar{x}$	10.37	0.0420	71.27	0.3127	69.18	0.2791
DS	0.1934	0.00096	0.0028	0.0071	1.307	0.0052

La respuesta TL del LiF:Mg,Ti será reproducible si cumple con la ecuación (1.12):

$$100 \frac{SD}{\bar{x}} \leq 7.5\%$$

Para el LiF:Mg+PTFE (0ppm de Ti) sustituyendo en la ecuación (1.12)

$$100 \frac{0.00096}{0.04202} \leq 7.5\% \quad 2.28\% < 7.5\%$$

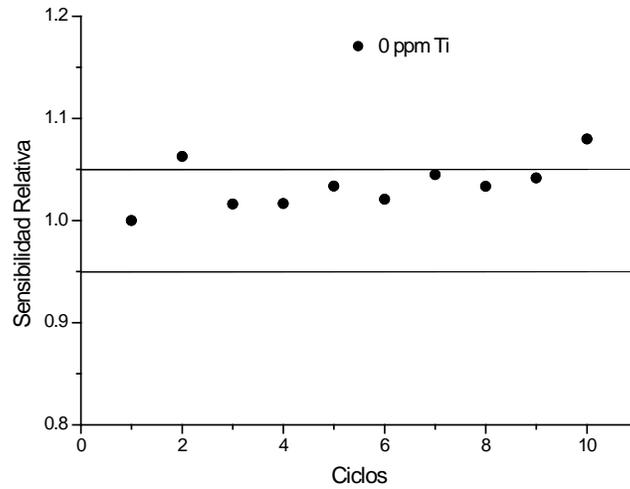
Para el LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti):

$$100 \frac{0.00710}{0.31278} \leq 7.5\% \quad 2.27\% < 7.5\%$$

Para el LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti):

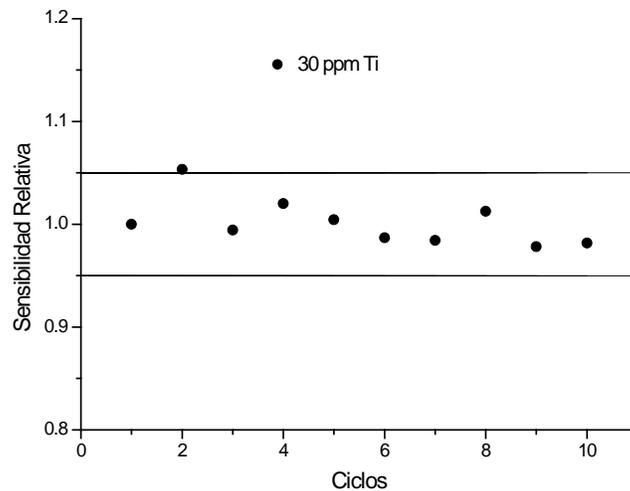
$$100 \frac{0.0052}{0.2791} \leq 7.5\% \quad 1.88\% < 7.5\%$$

De los cálculos realizados anteriormente se observa una buena reproducibilidad en todos los lotes de dosímetros analizados con valores de 2.28, 2.27 y 1.88% para las preparaciones de de LiF:Mg+PTFE, y LiF:Mg, Ti +PTFE (30 y 60 ppm Ti) respectivamente, estos valores se encuentran muy por debajo de los requeridos por organismos internacionales para fines dosimétricos ( $\pm 7.5\%$ ). En la figuras 3.12 se muestra la reproducibilidad de los dosímetros obtenidas en diez ciclos del LiF:Mg+PTFE.[1]



**Figura 3.12.** Reproducibilidad de LiF:Mg+PTFE.

En la figura 3.13 se muestra la reproducibilidad de los dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE con una concentración de 30ppm de Ti obtenida en los diez ciclos.



**Figura 3.13.** Reproducibilidad de LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm Ti).

En la figura 3.14 se muestra la reproducibilidad de los dosímetros de obtenida en los diez ciclos, del LiF:Mg,Ti+PTFE con una concentración de 60 ppm de Ti.

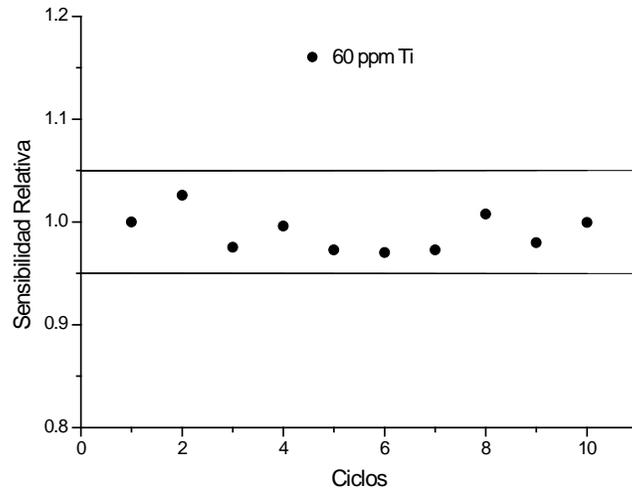


Figura 3.14. Reproducibilidad de LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti).

### 3.2.6. Respuesta en función de la dosis.

Para evaluar la respuesta en función de la dosis absorbida de radiación gamma en el intervalo de dosis entre 0.0001Gy- 1000Gy provenientes de una fuente de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$ . La figura 3.15 se muestra la respuesta TL como función de la dosis, en el intervalo de dosis de estudio para el LiF:Mg+PTFE el cual presentó la linealidad de respuesta en el intervalo de dosis entre 0.0025 y 50Gy (figura3.16). Presentó el efecto de supralinealidad arriba de 50 Gy y por arriba de 500Gy se apreció el efecto de saturación. La figura 3.16 presenta el intervalo de linealidad de respuesta y su estadística asociada.

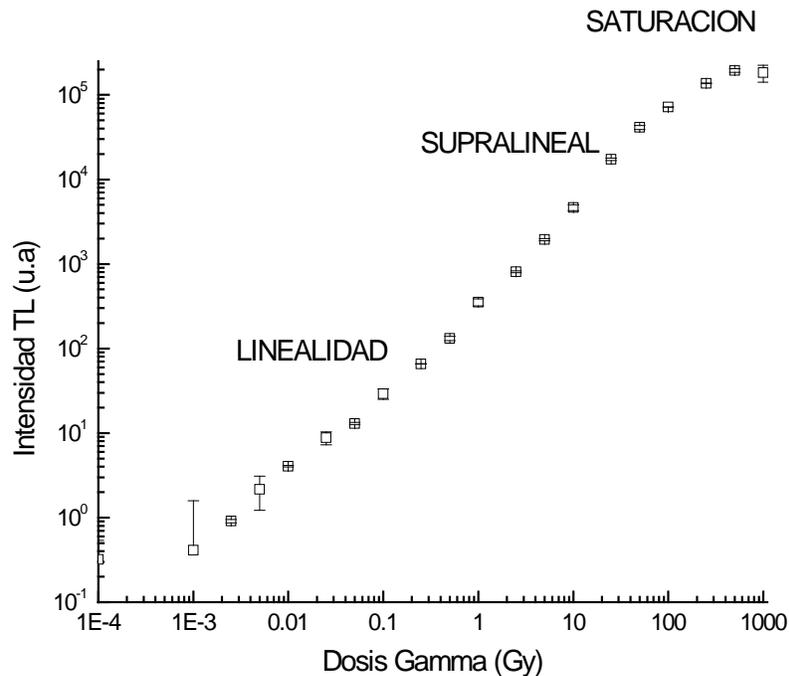


Figura 3.15. Respuesta TL del LiF:Mg+PTFE en función de la dosis de radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$ .

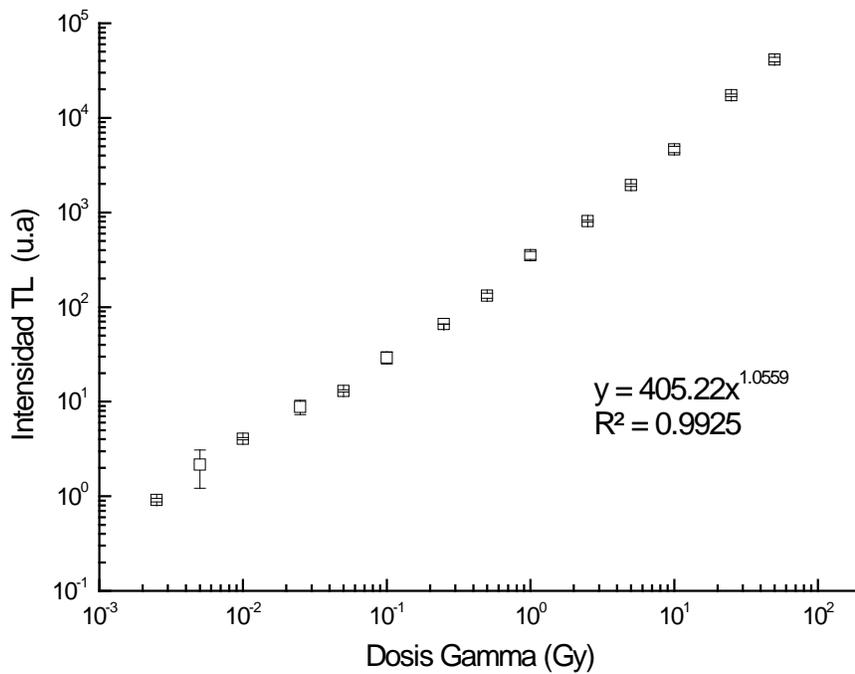


Figura 3.16. Intervalo de linealidad del LiF:Mg+PTFE irradiado con gammas de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$ .

En la figura 3.17 se observa la respuesta TL de los dosímetros de LiF:Mg,Ti (30 ppm Ti), presentaron un intervalo de linealidad desde 1mGy hasta 100 Gy, sin embargo, presenta el efecto de supralinealidad por debajo de 1mGy y por arriba de 100Gy a 1000Gy presenta el efecto de saturación. La figura 3.18 presenta el intervalo de respuesta lineal de estos dosímetros y su estadística asociada.

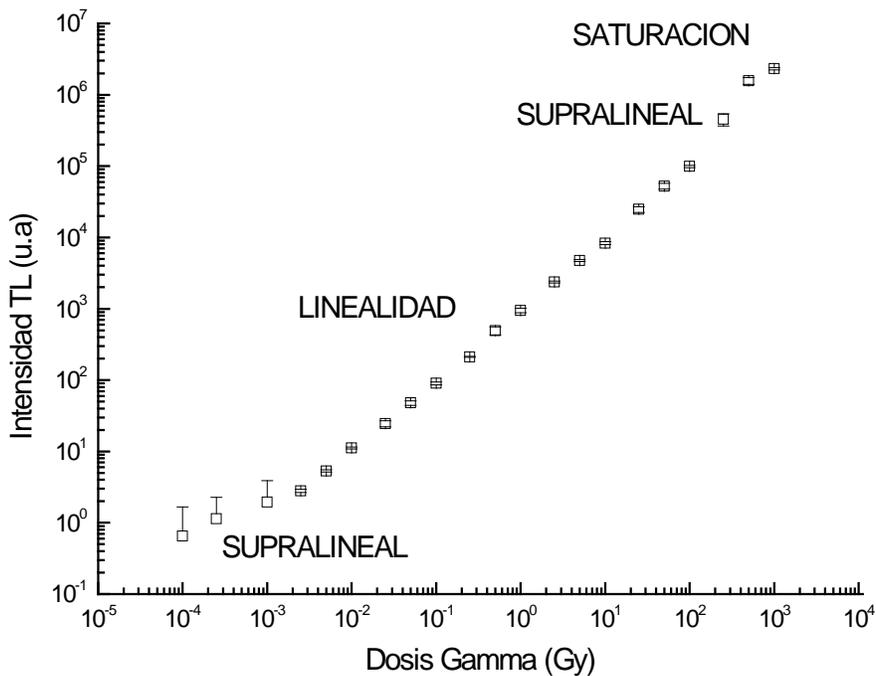
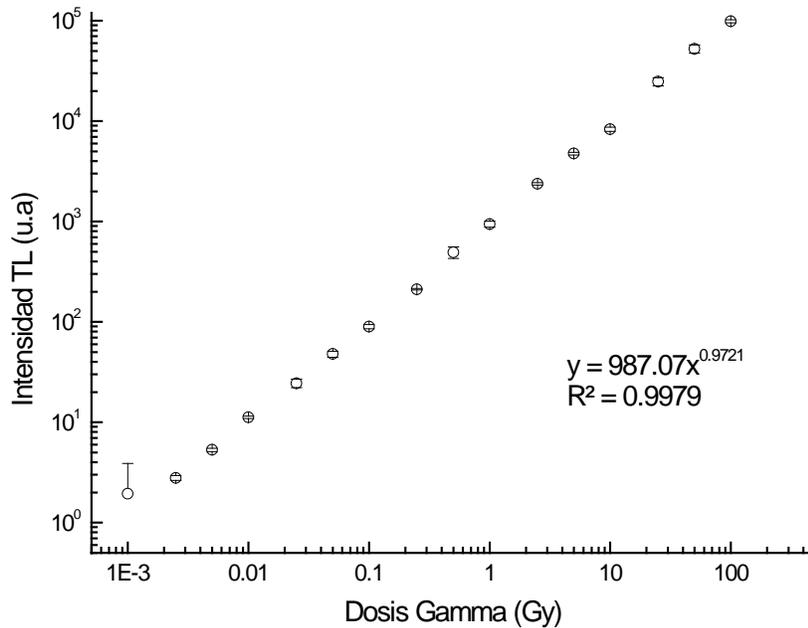
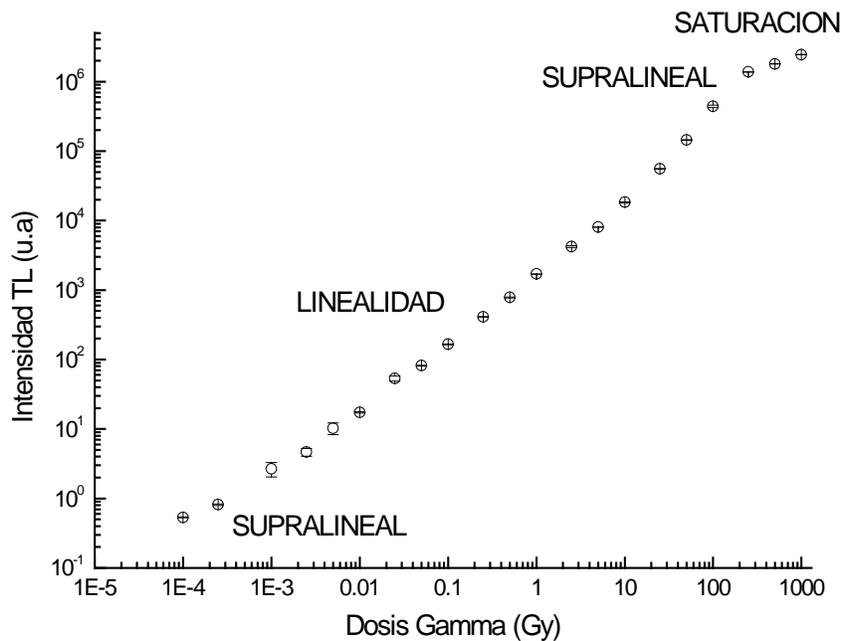


Figura 3.17. Respuesta TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$



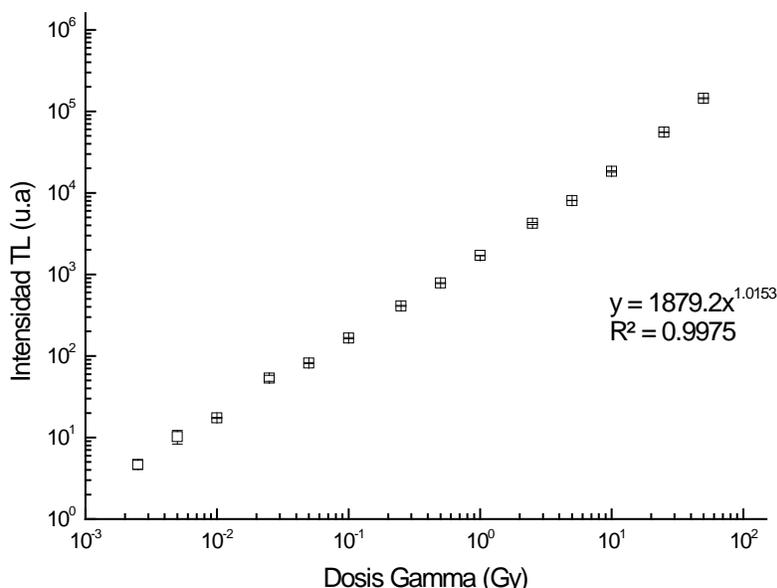
**Figura 3.18.** Intervalo de linealidad TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (30 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$ .

En la figura 3.19 se observa la respuesta TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm Ti) como función de la dosis, estos dosímetros presentaron linealidad de respuesta en el intervalo entre 0.0025 y 50 Gy. Presentaron efecto de supralinealidad por debajo de 0.0025 y arriba de 50 Gy. Se apreció el efecto de saturación por arriba de 500 Gy. La figura 3.20 presenta el intervalo de linealidad y su estadística asociada.



**Figura 3.19.** Respuesta TL del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$ .

El rango de linealidad (0.0025 a 50Gy) para esta preparación se observa en la figura 3.20, en este caso el rango de linealidad disminuye en comparación con la preparación de LiF:Mg,Ti con 30 ppm de Ti y es igual para la preparación sin impurezas de Ti.



**Figura 3.20.** Intervalo de linealidad del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm de Ti) en función de la dosis de radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{60}\text{Co}$ .

### 3.2.7. Umbral de detección.

Para determinar el umbral de detección en los dosímetros de LiF:Mg,Ti+PTFE (0, 30 y 60 ppm de Ti) se les aplicó un tratamiento térmico de borrado a 350°C por 30min seguido de 100°C por 2 hrs, se dejaron enfriar a temperatura ambiente y enseguida se les midió la lectura de fondo. Los resultados obtenidos se muestran en las tablas 3.9, 3.10 y 3.11. En la primera columna se presenta el número de dosímetro, en la segunda columna su lectura de fondo y en la tercera columna se presenta la dosis correspondiente, esta se obtuvo por extrapolación en la curva de calibración previamente elaborada al irradiar los dosímetros del mismo lote con radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  en un intervalo de dosis desde 0.1mGy hasta 10mGy.

**Tabla 3.9.** Lecturas de fondo y sus dosis correspondientes del LiF:Mg+PTFE.

No. de Dosímetro	Lectura TL	Dosis (mGy)
30	0.48	1.09
35	0.55	1.28
83	0.57	1.33
103	0.71	1.7
108	0.58	1.35
120	0.58	1.35
149	0.46	1.04
158	0.66	1.57
12	0.8	1.95
16	0.4	0.9
Media	0.579	1.356
DS	0.119	0.316

**Tabla 3.10.** Lecturas de fondo y sus dosis correspondientes LiF:Mg,Ti+PTFE (400 ppm de Mg, 30 ppm de Ti).

No. de Dosímetro	Lectura TL	Dosis (mGy)
40	0.76	0.12
71	0.82	0.138
96	0.64	0.88
3	0.8	0.132
119	0.76	0.12
124	0.74	0.114
129	0.75	0.117
181	0.63	0.085
185	0.79	0.129
7	0.7	0.103
Media	0.739	0.114
DS	0.064	0.017

**Tabla 3.11.** Lecturas de fondo y sus dosis correspondientes del LiF:Mg,Ti+PTFE (400 ppm de Mg, 60 ppm Ti).

No. de Dosímetro	Lectura TL	Dosis (mGy)
6	0.68	0.168
16	0.6	0.143
29	0.55	0.128
40	0.6	0.143
56	0.48	0.107
60	0.63	0.152
83	0.52	0.119
114	0.58	0.137
129	0.72	0.180
134	0.52	0.119
Media	0.588	0.1396
DS	0.074	0.022

Es importante resaltar que debido a las dosis tan pequeñas, no es posible irradiar los dosímetros con tiempos tan pequeños por lo que se hace la curva de calibración con dosis lo más bajas posibles y luego se extrapolan los valores de la lectura de fondo de los dosímetros para determinar el umbral de detección de los dosímetros en estudio.

Mediante la ecuación (2.3) de la sección 2.4.8 se obtuvo el umbral de detección para cada una de las diferentes preparaciones utilizadas en este experimento.

$$t \cdot SD \leq 0.1 \text{ mGy}$$

donde:

$t$  es la  $t$ -student para  $n-1$  grados de libertad (=2.622 para 95 % de nivel de confianza)

$SD$  es la desviación estándar expresada en unidades de dosis

Para el LiF:Mg+PTFE con 0ppm de Ti:

$$tDS \leq 0.1 \text{ mGy}; \quad (2.622)(0.316) \leq 0.1 \text{ mGy}; \quad 0.83 \leq 0.1 \text{ mGy}$$

Para el LiF:Mg,Ti+ PTFE con 30ppm de Ti:

$$tDS \leq 0.1\text{mGy}; \quad (2.622)(0.017) \leq 0.1\text{mGy}; \quad 0.04 \leq 0.1\text{mGy}$$

Para el LiF:Mg,Ti+ PTFE con 60ppm de Ti:

$$tDS \leq 0.1\text{mGy}; \quad (2.622)(0.022) \leq 0.1\text{mGy}; \quad 0.05 \leq 0.1\text{mGy}$$

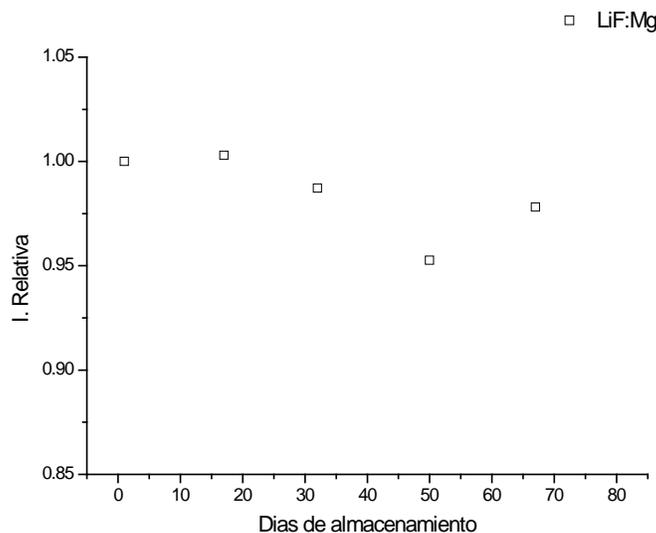
### 3.2.8. Desvanecimiento de la información TL (fading).

Se dió un tratamiento térmico de borrado a los polvos de LiF:Mg,Ti con una concentración de 0, 30 y 60ppm de Ti a 400°C por 1hr seguido de 100°C por 2hrs, posteriormente a las muestras de LiF:Mg,Ti (30 y 60ppm de Ti) se irradiaron con una dosis de 100mGy y para el LiF:Mg se irradió con una dosis de 1Gy en una fuente de <sup>60</sup>Co. Las lecturas TL se realizaron en atmosfera inerte, la señal fue integrada desde 100°C hasta 300°C con un tiempo de adquisición de 20s y una rapidez de calentamiento de 10°C/s. En la tabla 3.12 se muestra la comparación entre la intensidad TL y la intensidad relativa en función del número de días transcurridos después de la irradiación para el LiF:Mg.

**Tabla 3.12.** Desvanecimiento de la información TL del LiF:Mg.

No. Días	Intensidad TL	Intensidad Relativa
1	428.17	1
14	429.45	1.002
29	422.69	0.987
45	409.11	0.952
60	413.46	0.978

La pérdida de información de los polvos de LiF:Mg fue del 2.2% en un periodo de tiempo de 60 días (tabla 3.12), esta pérdida de información se encuentra por debajo de los requerimientos internacionales en dosimetría personal y ambiental el cual es del 5% de desvanecimiento para un mes, a temperatura ambiente (figura 3.21). [7]



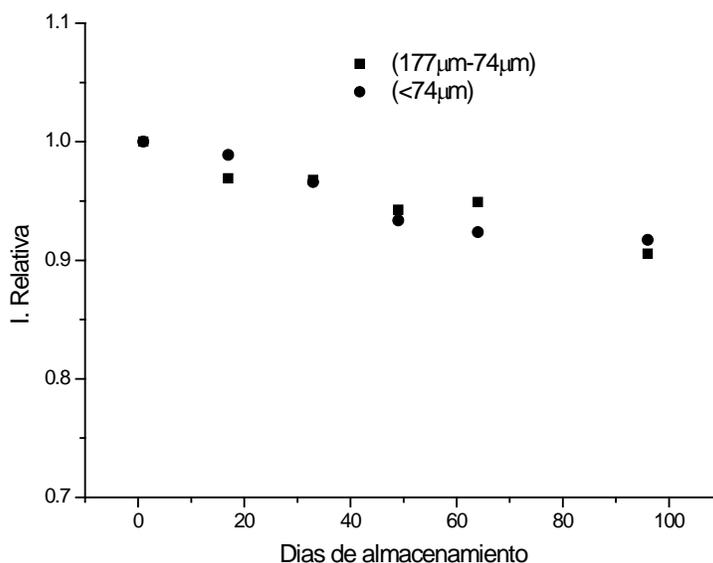
**Figura 3.21.** Desvanecimiento del LiF:Mg.

Para el caso de los polvos de LiF:Mg,Ti con 30ppm de Ti se utilizaron dos tamaños de grano, polvos con tamaños menores a 74 $\mu$ m y polvos con tamaños comprendidos entre 74 y 177 $\mu$ m, para observar si se presentan cambios en el desvanecimiento por efecto del tamaño de grano utilizado. En la tabla 3.13 se observa la comparación entre la pérdida de información de los polvos con los diferentes tamaños de grano en función del tiempo transcurrido después de la irradiación

**Tabla 3.13.** Desvanecimiento de la información TL del LiF: Mg,Ti (400 ppm Mg, 30 ppm Ti).

No. Días	LiF:Mg,Ti (74 $\mu$ m-177 $\mu$ m)		LiF:Mg,Ti (<74 $\mu$ m)	
	Intensidad TL	Intensidad TL relativa	Intensidad TL	Intensidad relativa
1	153.24	1	170.2	1
17	148.51	0.969	168.29	0.988
33	148.29	0.967	164.39	0.965
49	146.90	0.942	158.89	0.933
64	145.43	0.949	157.20	0.923
96	140.61	0.905	156.11	0.917

La pérdida de información en los polvos de LiF:Mg,Ti con 30ppm de Ti es menor del 4% para un mes después de la irradiación, en la tabla 3.13 se observa una semejanza en los resultados para los dos tamaños de grano utilizados, teniendo una pérdida de información del 9.5% para el tamaño de grano comprendido entre 74 y 177 $\mu$ m en tres meses y un 8.3% de pérdida para el caso del tamaño de grano menor a 74 $\mu$ m para tres meses. En la figura 3.22 se muestra una gráfica comparativa de estos resultados.



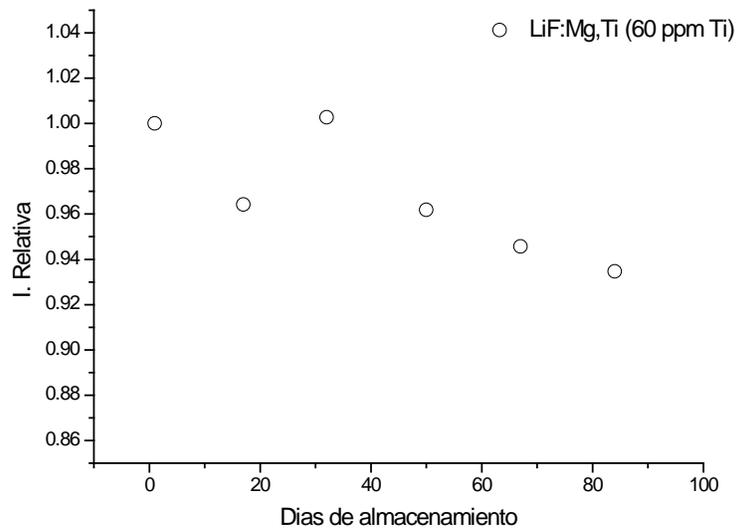
**Figura 3.22.** Desvanecimiento del LiF:Mg,Ti (30 ppm de Ti).

En la tabla 3.14 se observan los resultados de las lecturas realizadas desde un día hasta 84 días después de la irradiación para el LiF:Mg,Ti con 60ppm de Ti se tiene una pérdida de información del 1.5% en tres meses.

**Tabla 3.14.** Desvanecimiento de la información TL del LiF:Mg,Ti (60 ppm Ti).

No. de días	Intensidad TL LiF:Mg,Ti	Intensidad TL relativa LiF:Mg,Ti
1	223.18	1
17	220.13	0.9863
32	232.58	1.0421
50	223.09	0.9995
67	213.91	0.9584
84	216.94	0.9855

En la figura 3.23 se observa la pérdida de información en función del tiempo para los para el polvo del LiF:Mg,Ti (60ppm de Ti), también se aprecia en ciertas partes de la grafica un aumento en la información del material.



**Figura 3.23.** Desvanecimiento del LiF:Mg,Ti (60ppm de Ti).

### 3.2.9. Efectos de la humedad en los dosímetros.

Se seleccionó un dosímetro de LiF:Mg+PTFE, LiF:Mg,Ti+PTFE (30 y 60ppm de Ti) para aplicarles un tratamiento térmico de borrado a 350°C por 30min seguido de 100°C por 2hrs, posteriormente se irradiaron con una fuente de <sup>60</sup>Co a una dosis de 25mGy, las lecturas fueron realizadas 30min después de la irradiación. En la tabla 3.15 se reporta la masa promedio, así como la lectura TL correspondiente a cada dosímetro antes y después de ser sumergidos en agua. Se observa una disminución en la masa de las pastillas después de ser sumergidas en agua y también la intensidad TL disminuye posiblemente a consecuencia de la pérdida de masa.

**Tabla 3.15.** Promedio de las masa obtenidas durante la prueba de efecto de la humedad.

	LiF:Mg	LiF:Mg,Ti (30ppm de Ti)	LiF:Mg,Ti (60ppm de Ti)
Masa promedio antes de ser sumergida (mg)	25.35	17.22	24.18
Lectura antes de ser sumergida	7.08	33.44	39.99
Masa promedio después de ser sumergida (mg)	25.16	16.87	23.97
Lectura después de ser sumergida	6.40	31.34	36.78

El LiF:Mg,Ti (30ppm de Ti) tiene la mayor pérdida de masa con un 2.07% en comparación con el LiF:Mg,Ti con un 0.74% y el LiF:Mg,Ti (60ppm de Ti) con un 0.87% (tabla 3.16), como se mencionó anteriormente la sensibilidad en la intensidad TL puede estar relacionada con la pérdida debido a una disminución en la misma.

**Tabla 3.16.** Efectos de la humedad en el LiF:Mg+PTFE y LiF:Mg,Ti+PTFE (30 y 60 ppm de Ti).

	LiF:Mg	LiF:Mg,Ti (30 ppm Ti)	LiF:Mg,Ti (60 ppm Ti)
Pérdida de masa	0.74 %	2.07 %	0.87 %
Sensibilidad antes de ser sumergida (nC/mg*mGy)	0.011	0.077	0.066
Sensibilidad después de ser sumergida (nC/mg*mGy)	0.010	0.074	0.061

### 3.3. Determinación de los Parámetros Cinéticos de la Curva TL por Deconvolución.

Los resultados de la deconvolución se muestran en la tabla de 3.17 para la preparación de LiF:Mg (0ppm de Ti), se reportan los valores de la temperatura e intensidad máxima de cada pico TL obtenido, el orden de la cinética (b), la energía de activación de las trampas (E), el factor de frecuencia (s) y el factor pre-exponencial (s\*). Los picos 1, 2 y 4 presentaron una cinética de orden general y el pico 3 se le considero como una cinética de primer orden por tener un valor relativamente cercano a 1. La energía de activación o profundidad de la trampa obtenida fue de 1.17, 1.37, 1.58 y 2.10 eV para los picos 1, 2, 3 y 4 respectivamente. En la figura 3.24 se observa la comparación de la curva TL experimental para el LiF:Mg y la curva TL obtenida de la sumatoria de los picos individuales ajustados por el método de deconvolución.

**Tabla 3.17.** Resultados de la deconvolución aplicada al espectro TL del LiF:Mg.

Pico	T <sub>M</sub> (K)	I <sub>M</sub> (u.a)	b	E (eV)	n <sub>0</sub> (cm <sup>-3</sup> )	s* (cm <sup>3(b-1)</sup> s <sup>-1</sup> )
1	383.92	3.13E+02	1.13	1.17	4.66E+03	1.25E+14
2	423.08	3.53E+02	1.22	1.37	5.68E+03	5.01E+14
3	461.18	1.03E+03	1.05	1.58	1.59E+04	1.83E+16
4	513.95	1.96E+04	1.86	2.10	3.89E+05	1.05E+15

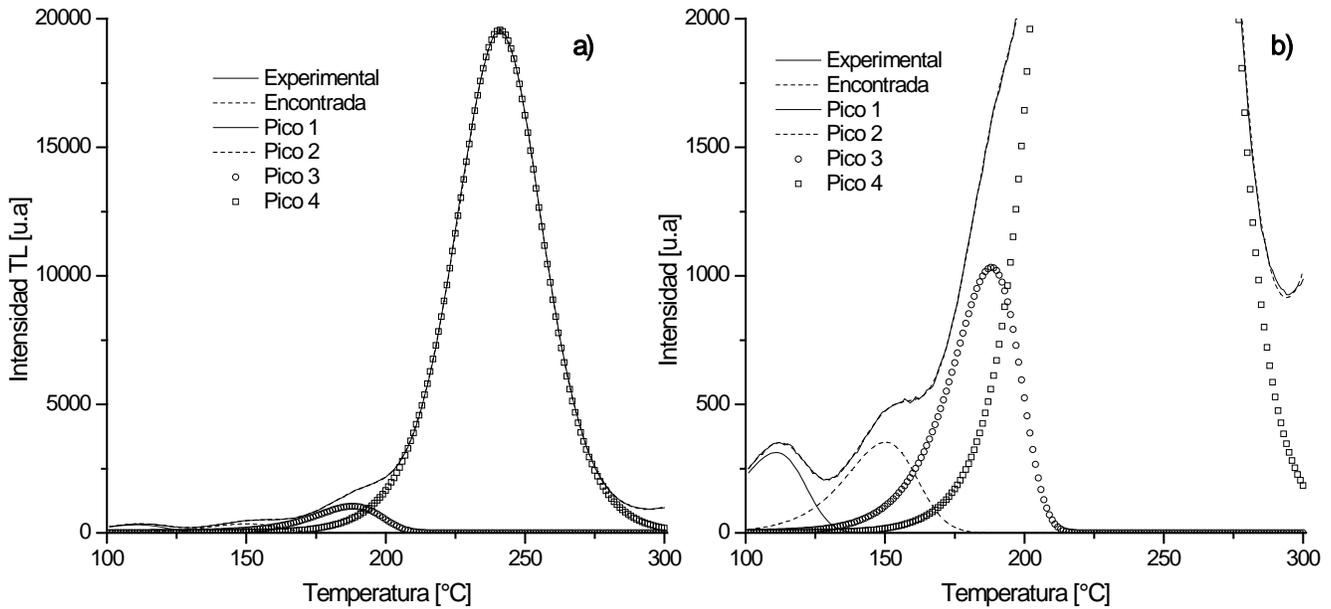


Figura 3.24. Deconvolución de la curva TL del LiF:Mg a) curva TL completa, b) picos de baja temperatura. (FOM=0.55)

Los resultados obtenidos por el método de deconvolución para la preparación de LiF:Mg,Ti (60ppm de Ti) se muestran en la tabla 3.18. Para esta muestra se ajustaron 5 picos TL con una cinética de orden general para todos, las energías de activación encontradas fueron de 1.43, 1.63, 2.14, 2.36 y 3eV para los picos 1, 2, 3, 4 y 5 respectivamente. En la figura 3.25 se observan los picos TL ajustados a la curva TL experimental y la sumatoria de estos picos TL.

Tabla 3.18. Resultados de la deconvolución aplicada al espectro TL del LiF:Mg,Ti (60ppm de Ti).

Pico	$T_M$ (K)	$I_M$ (u.a)	b	E (eV)	$n_0$ (cm <sup>-3</sup> )	$s^*$ (cm <sup>3(b-1)</sup> s <sup>-1</sup> )
1	384.55	1.05E+04	1.34	1.43	1.42E+05	2.24E+16
2	424.57	9.86E+03	1.82	1.63	1.70E+05	2.34E+14
3	461.52	2.50E+04	1.80	2.14	3.88E+05	1.85E+18
4	495.50	8.99E+04	1.55	2.36	1.34E+06	9.18E+19
5	557.64	4.03E+03	1.25	3.00	5.09E+04	5.84E+25

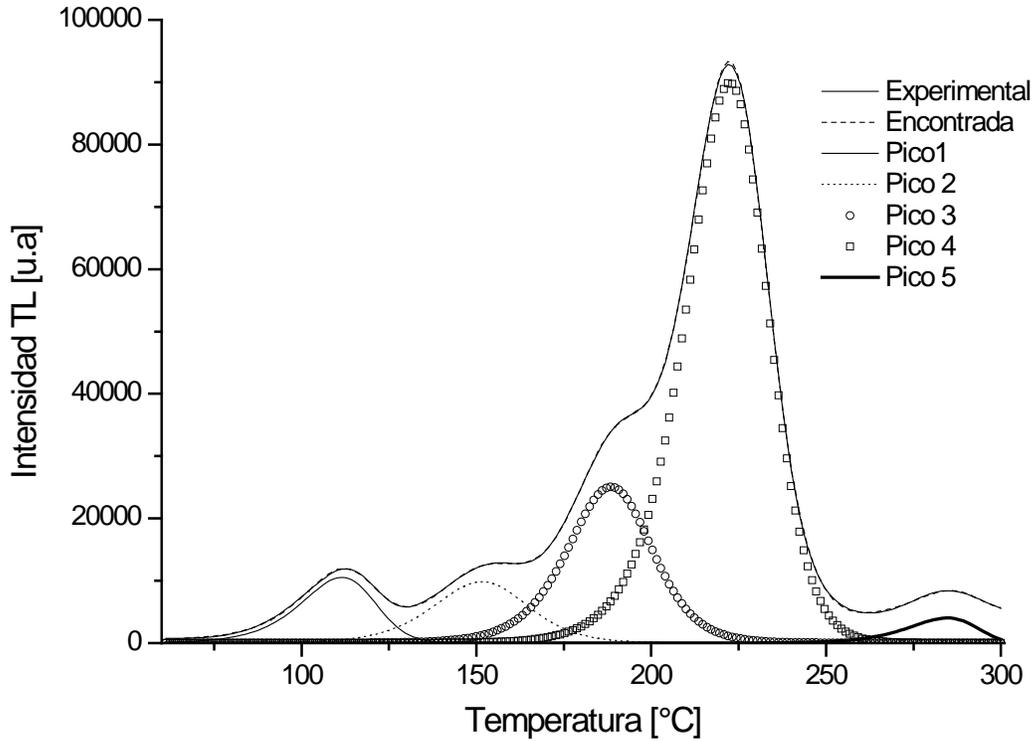


Figura 3.25. Deconvolución de la curva TL del LiF:Mg,Ti (60ppm de Ti) con FOM=0.47.

En la tabla 3.19 se muestran los resultados del ajuste por deconvolución para las muestras de TLD-100, se encontraron 5 picos TL con un orden de cinética para los picos del 2 al 5 y un orden de cinética de primer orden para el pico 1 por tener un valor muy cercano al 1. Las energías de activación reportadas fueron de 1.23, 1.43, 1.90, 2.27 y 3eV para los picos 1, 2, 3, 4 y 5 respectivamente. En la figura 3.26 se observa la comparación de la curva TL ajustada y la curva TL experimental así como los picos encontrados por deconvolución.

Tabla 3.19. Resultados de la deconvolución aplicada al espectro TLD-100.

Pico	$T_M$ (K)	$I_M$	b	E(eV)	$n_0$ (cm <sup>-3</sup> )	$s^*$ (cm <sup>3</sup> (b-1)s <sup>-1</sup> )
1	387.01	2.10E+04	1.06	1.23	2.91E+05	
2	426.49	2.19E+04	1.44	1.43	3.74E+05	5.84E+13
3	460.68	4.04E+04	1.33	1.90	5.89E+05	1.62E+18
4	487.23	8.20E+04	1.30	2.27	1.11E+06	8.76E+20
5	557.28	3.17E+03	1.32	3.00	4.31E+04	9.55E+24

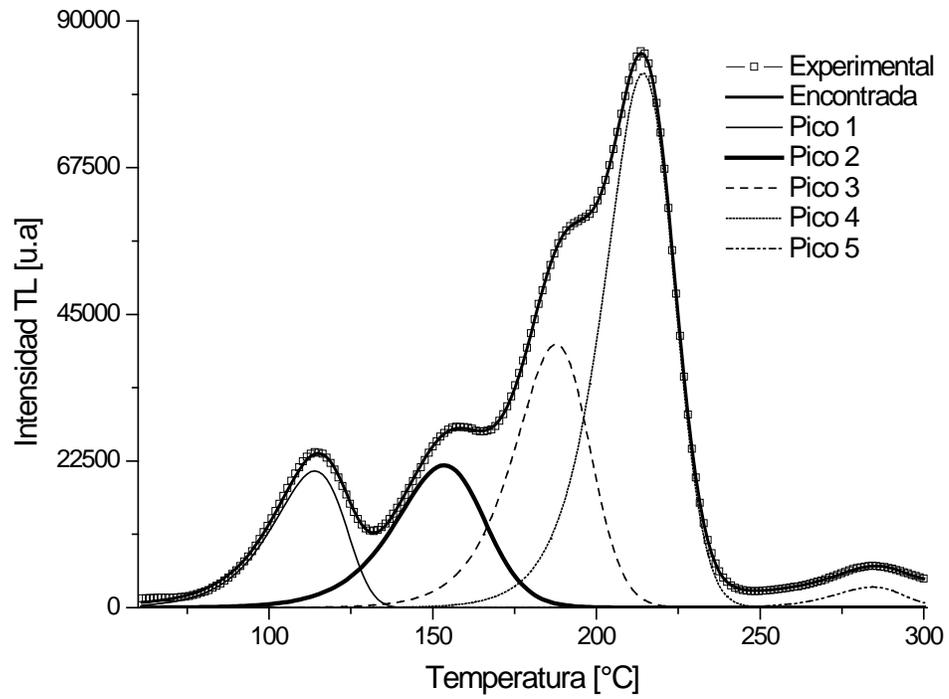


Figura 3.26. Deconvolución de la curva TL del TLD-100 (FOM=0.56).

# CAPÍTULO IV: DISCUSIÓN DE RESULTADOS

La síntesis del material TL se realizó por el método de sustancia fundida se usó LiF de grado analítico en lugar de LiF suprapuro, siguiendo el procedimiento reportado en el capítulo 2, se incorporaron los activadores de magnesio (Mg) y titanio (Ti) en soluciones acuosas.

Se hizo una preparación de LiF incorporando solamente magnesio como dopante 400 ppm para tomarse como referencia, posteriormente se incorporó el Ti desde 15 ppm hasta 120 ppm. Observándose que la concentración de impurezas modifica tanto la forma de la curva como la intensidad TL. Se apreció la intensidad TL máxima del pico dosimétrico, con una concentración de 60 ppm de Ti, sin embargo, la respuesta TL integral es mayor para la concentración de 90 ppm de Ti, esto se debe a la contribución de los picos a bajas temperaturas. Mientras que en la preparación con 120 ppm de Ti, la respuesta TL disminuyó considerablemente debido a una posible saturación de trampas. Es relevante señalar que la presencia del Ti es responsable de la recombinación de las vacancias intersticiales (centros F) establecidas cerca de las impurezas del  $Mg^{2+}$ .

En la micrografía obtenida en el MEB para una muestra de LiF:Mg,Ti con una concentración de 400 ppm de magnesio y 30 ppm de titanio. Se observa un tamaño homogéneo de partícula, el crecimiento del material es en capas. Los poros muestran simetría con un promedio de 272.52nm.

Los resultados obtenidos por difracción de rayos X (XRD), muestran que la estructura cristalina del LiF, es cúbica tipo F con parámetros de celda a: 4.2Å, obteniendo un promedio estimado de partícula de 64.6nm., la reflexión más intensa (200) del patrón de difracción mostrado en la micrografía.

Los picos de difracción están localizados a un valor de  $\theta=38.7^\circ$ ,  $44.9^\circ$ ,  $65.5^\circ$ ,  $78.7^\circ$  y  $83.2^\circ$  que corresponden a los planos de difracción (111), (200), (220), (311) y (222) respectivamente (figura 3.2).

La curva TL de LiF: Mg (400 ppm) presenta tres picos apenas perceptibles a  $110^\circ\text{C}$ ,  $150^\circ\text{C}$  y  $188^\circ\text{C}$ , el pico dosimétrico se encuentra en  $240^\circ\text{C}$ . Los picos de baja temperatura son muy pequeños y desvanecen a los pocos minutos de la irradiación, por lo tanto la pérdida de información a temperatura ambiente es despreciable, prácticamente se considera una curva TL con un solo pico dosimétrico y es la curva ideal para fines de dosimetría de la radiación, razón por la que se realizó su caracterización dosimétrica.[5]

En la figura 3.4 se muestra la curva TL del LiF:Mg,Ti (60 ppm Ti), donde se aprecian 5 picos en  $110^\circ\text{C}$ ,  $151^\circ\text{C}$ ,  $188^\circ\text{C}$  y  $285^\circ\text{C}$ , el pico dosimétrico se presenta a  $222^\circ\text{C}$ , cabe señalar que la intensidad TL es más alta comparada con el TLD-100. Se ha mencionado que el Ti favorece la respuesta TL y está asociado con centros F, sin embargo, la respuesta TL fue reportada de la recombinación de una vacancia intersticial responsable del pico dosimétrico, el cual corresponde a un nivel de trampas más estables. [8]

En la figura 3.4 el TLD-100 muestra 5 picos en  $114^\circ\text{C}$ ,  $153^\circ\text{C}$ ,  $187^\circ\text{C}$  y  $284^\circ\text{C}$  el pico dosimétrico se encuentra en  $214^\circ\text{C}$  en la literatura se reporta  $195^\circ\text{C}$  [5], cabe señalar que la intensidad máxima del LiF:Mg,Ti es 10% superior a la intensidad máxima del TLD-100, además se aprecia que los picos a bajas temperaturas del TLD-100 son mayores a los de LiF:Mg,Ti, se ha reportado la contribución de los picos a bajas temperaturas son causantes de alto fading en el material.

El calentamiento libera los átomos intersticiales y la luz es emitida cuando ellos se recombinan, posiblemente con centros F, se observa además que se desplazan los picos a temperaturas altas debido al tratamiento térmico.[33] Calentando a  $300^\circ\text{C}$  por 30 minutos, se aprecia que la intensidad de los picos de baja temperatura, son más altos y el pico dosimétrico aparece por debajo de los  $200^\circ\text{C}$ , con el tratamiento térmico a  $350^\circ\text{C}$  por 30 minutos se observa que los picos a bajas temperaturas son muy pequeños y el pico dosimétrico se encuentra

235°C, lo cual es una ventaja para el material. La influencia de las impurezas en el LiF da la forma y sensibilidad de las curvas TL, esto puede ser más eficiente con un tratamiento térmico adecuado, el cual modifica la distribución de las trampas afectando la forma de la curva TL (figura 3.6).[33]

Se establece como tratamiento estándar de borrado para LiF: Mg, Ti en polvo 400°C por 1 hora seguido de 100°C por 2 horas. Mientras que para los dosímetros en forma de pastilla, LiF: Mg,Ti+PTFE, se consideró como tratamiento estándar de borrado 350°C por 30 minutos seguido de 100°C por 2 horas.[33]

El polvo de LiF:Mg,Ti con (60 y 90 ppm de Ti) presentaron la sensibilidad más alta comparada con el TLD-100 (figura 3.8) se aprecia que la intensidad TL del pico dosimétrico para la concentración (60 ppm Ti) es mayor. Por otro lado los picos a bajas temperaturas son pequeños en las dos preparaciones (60 y 90 ppm), se aprecia un hombro a 80°C para la preparación de 90 ppm Ti el cual es mayor a la preparación de 60 ppm Ti, por lo tanto la intensidad TL es mayor debido a esta contribución.

Para la caracterización dosimétrica, primero se homogeneizó el lote de LiF: Mg + PTFE (400 ppm Mg) donde se obtuvieron 77 dosímetros, LiF: Mg, Ti +PTFE (30 ppm Ti) se seleccionaron 34 dosímetros y para el LiF:Mg,Ti + PTFE (60 ppm Ti) se eligieron 71 dosímetros.[1]

La reproducibilidad de la respuesta TL de los dosímetros LiF:Mg+PTFE, LiF:Mg,Ti + PTFE (30 ppm Ti) y LiF:Mg,Ti +PTFE (60 ppm Ti) fueron de 2.28%, 2.27% y 1.88% respectivamente, cumpliendo satisfactoriamente con las recomendaciones de las normas internacionales ( $\pm 7.5\%$ ).[1]

El estudio de la respuesta TL como función de la dosis de radiación gamma se llevó a cabo en el intervalo entre  $10^{-4}$ - $10^3$ Gy. La figura 3.15 presenta la respuesta TL como función de la dosis, en el intervalo de dosis de estudio para el LiF:Mg+PTFE el cual presentó la linealidad de respuesta en el intervalo de dosis entre 0.0025 y 50Gy. Presentó el efecto de supralinealidad arriba de 50 Gy y por arriba de 500Gy se apreció el efecto de saturación. La figura 3.16 presenta la linealidad de respuesta y su estadística asociada.

En la figura 3.17 se observa la respuesta TL en función de la dosis de los dosímetros de LiF:Mg,Ti (30 ppm Ti), presentaron un intervalo de linealidad desde 1mGy hasta 100 Gy, sin embargo, presenta el efecto de supralinealidad por debajo de 1mGy y por arriba de 100Gy, a 1000Gy presenta el efecto de saturación. La figura 3.18 presenta la respuesta lineal de estos dosímetros y su estadística asociada.

En la figura 3.19 del LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm Ti), se observa la respuesta TL como función de la dosis de los dosímetros en el intervalo de estudio, los cuales presentaron linealidad de respuesta en el intervalo entre 0.0025 y 50 Gy. Sin embargo, presentaron efecto de supralinealidad por debajo de 0.0025 y arriba de 50 Gy. Se apreció el efecto de saturación por arriba de 500 Gy. La figura 3.20 presenta el intervalo de linealidad y su estadística asociada.

Como se puede apreciar el LiF:Mg+PTFE (0ppm de Ti) tiene un umbral ocho veces mayor al establecido por la norma internacional para dosimetría ambiental, sin embargo por su amplio intervalo de linealidad (figura 3.16) puede ser utilizado para radiodiagnóstico y radioterapia pero no para dosimetría ambiental el LiF:Mg,Ti+PTFE (30ppm de Ti) presenta un umbral de 0.04mGy y LiF:Mg,Ti+PTFE (60ppm de Ti) obtuvo un umbral de 0.05mGy cumpliendo con la norma para dosimetría ambiental.

La prueba de estabilidad de respuesta TL (Fading), mostró que el polvo de LiF:Mg tuvo una pérdida de 2.2% en dos meses, valor que está adentro de los requerimientos internacionales en dosimetría personal y ambiental

que es del 5% para un mes, a temperatura ambiente (Figura 3.22).[1] El LiF: Mg, Ti (400 Mg, 30 ppm Ti) presentó un desvanecimiento del 4% en un mes.

El LiF:Mg, Ti (400 ppm Mg, 60 ppm Ti) presenta una pérdida de información del 2% en tres meses por lo tanto es una característica favorable para el material y óptima comparándola con el material cuya concentración es de 30 ppm Ti y el TLD- 100.

Los materiales TL preparados en este trabajo, son estables a los factores ambientales, ya que no presentaron variaciones de consideración al someterse a la prueba de humedad. Las variaciones en su masa se deben a las variaciones en el momento de la pesada de las muestras ya que, en el ININ el porcentaje de humedad varía considerablemente de un día para otro.

Los resultados obtenidos por el método de deconvolución el LiF: Mg, muestran que los picos 1, 2 y 4 presentan una cinética de orden general, mientras que el pico 3, presentó una cinética que puede considerarse de primer orden. La energía de activación o profundidad de las trampas fueron de 1.17, 1.37, 1.58 y 2.10 eV para los picos 1, 2, 3 y 4 (figura 3.26) con un FOM de 0.55. Para la preparación de LiF:Mg,Ti (60 ppm Ti) muestran 5 picos, con una cinética de orden general. La energía de activación o profundidad de las trampas fueron de 1.43, 1.63, 2.14, 2.36 y 3 eV para los picos 1, 2, 3, 4 y 5 respectivamente (figura 3.27) con un FOM de 0.47. El TLD – 100 presenta 5 picos, el pico 1 mostró una cinética de primer orden y el resto de los picos mostraron una cinética de orden general, la energía de activación fue de 1.23, 1.43, 1.90, 2.27 y 3eV para los picos 1, 2, 3, 4 y 5 respectivamente (figura 3.28) con un FOM de 0.56.

# CONCLUSIONES

El LiF:Mg presentó el pico dosimétrico a una temperatura de 245°C, mientras que el LiF:Mg,Ti (30 ppm Ti y 60 ppm Ti) mostraron a una temperatura de 220°C y 227°C respectivamente.

La reproducibilidad de la respuesta a la radiación de los dosímetros de LiF: Mg, Ti + PTFE (30 ppm Ti) y LiF: Mg, Ti +PTFE (60 ppm Ti) satisface ampliamente con la norma internacional de protección radiológica.

La respuesta TL en función de la dosis para el LiF:Mg+PTFE el presentó la linealidad de respuesta en el intervalo de dosis entre 0.0025 y 50Gy, el efecto de supralinealidad está por arriba de 50 Gy y por arriba de 500Gy se apreció el efecto de saturación. Los dosímetros de LiF:Mg,Ti (30 ppm Ti), presentaron un intervalo de linealidad 1mGy hasta 100 Gy, sin embargo, presenta el efecto de supralinealidad por debajo de 1mGy y por arriba de 100Gy a 1000Gy presenta el efecto de saturación. El LiF:Mg,Ti+PTFE (60 ppm Ti) se observó linealidad de respuesta en el intervalo entre 0.0025 y 50 Gy. Presentaron efecto de supralinealidad por debajo de 0.0025 y arriba de 50 Gy. Se apreció el efecto de saturación por arriba de 500 Gy.

El umbral de detección de los dosímetros para el LiF: Mg + PTFE es de 0.83015mGy, para LiF: Mg, Ti (30 ppm de Ti y 60 ppm Ti) se obtuvo un umbral de 0.0465m Gy y de 0.059mGy respectivamente.

La prueba de estabilidad de respuesta TL mostro que el polvo de LiF:Mg tuvo una pérdida de 2.2% en dos meses. Mientras que LiF: Mg, Ti (30 ppm Ti) presentó una pérdida de información del 9.5% para el tamaño de grano comprendido entre 74 y 177µm en tres meses y un 8.3% de pérdida para el caso del tamaño de grano menor a 74µm para tres meses. El LiF: Mg, Ti (400 ppm Mg, 60 ppm Ti) presenta una pérdida de información del 1.5% en tres meses.

Los materiales TL desarrollados en este trabajo, son estables a los factores ambientales, ya que las variaciones mostradas en la pesada están dentro de la desviación estándar.

Por el método de deconvolución se aprecia que el LiF:Mg, presenta 4 picos mientras que el LiF:Mg, Ti (60 ppm de Ti) se muestran 5 picos acorde a la teoría [31]. El LiF:Mg presenta el pico dosimetrico a una temperatura de 240 °C con una energía de activacion de 2.1 eV y la curva es de cinética de orden general, el LiF:Mg,Ti (60 ppm Ti) el pico 4 presenta una intensidad máxima una temperatura de 222 °C, la profundidad dela trampa es de 2.36 eV la curva es cinética de orden general donde es predominante el atrapamiento. [34]

## TRABAJOS A FUTURO

Se proponen nuevas preparación de LiF:Mg, variando la concentración del dopante, para la optimización del umbral de este nuevo material TL, ya que presenta una curva TL optima para fines dosimétricos.

Probar los dosimétricos aquí desarrollados en la dosimetría de la radiación ionizante, en aplicaciones clínicas en institutos de investigación y en medio ambiente.

# REFERENCIAS BLIBLIOGRAFICAS

- [1] International Electrotechnical Commission. Thermoluminescent dosimetry for personnel and environmental monitoring. Technical Committee No.45 Nuclear Instrumentation. Subcommittee 45 B Radiation Protection Instrumentation (Draft 1984)
- [2] J.W. Poston, Dosimetry . Texas A, M. University
- [3] Cameron J.R. and Suntharalingam N. (1967) The role of thermoluminescent dosimeters in personnel dosimetry. Radiation Dose Measurements: Their Purpose, Interpretation and Required Accuracy in Radiological Protection. Proc. Symp. Stockholm, ENEA, O.C.D.E., Paris.
- [4] Cameron J.R and Orser L (1964) Thermoluminescence of lithium fluoride for various types and concentrations of dopants. USAEC Contract at 1105
- [5] Cameron J.R., Suntharalingam N. and Kenney G.N. (1968) Thermoluminescent dosimetry. The University of Wisconsin Press. London.
- [6] Cameron J.R., Suntharalingam N., Wilson R.S. and Watanabe S. (1968) Supralinearity of thermoluminescent phosphors. Proc. 2<sup>nd</sup> Int. Conf. Lumin. Dosim. Gatlinburg.
- [7] Moharil S. V, Shahare D.I. (1993) Simple preparation of LiF:Mg, Ti phosphor. Journal of materials sciences letters. 606-607.
- [8] Azorin J., Furetta C. and Scacco A. (1993) Preparation and properties of thermoluminescent materials. Review Article. Phys. Stat. Sol (A), 138.
- [9] Attix F. H. (1986) Introduction to Radiological physics and Radiation Dosimetry
- [10] Azorín Nieto J y Azorín Vega J. C. (2010) Protección Radiológica. UAM.
- [11] Ortega A.X. and Bisbal J. J. (1994) Radiaciones ionizantes: Utilización y Riesgos I. Ed. UPC.
- [12] Claudio Furetta, Pao- Shan Weng (1998) Operational Thermoluminescence Dosimetry
- [13] Mahjna S., Yossian D. and Horowitz Y.S. (1995) The effect of thermal annealing on defect structure and thermoluminescence in LiF:Mg,Cu,P. Rad. Meas. 24(4), 395-400.
- [14] Horowitz Y.S, Chen R. (1984) Kinetics of thermoluminescence glow peaks in: thermoluminescence and thermoluminescent dosimetry. Ed. CRC Press, Boca Raton.
- [15] Meijvogel K. and Bos A.J.J. (1995) Influence of thermal treatments on glow curve and thermoluminescence emission spectra of LiF:Mg, Cu, P. Radiations Measurements.
- [16] Lakshmanan A.R. and Bhatt R.C. (1980) Photon energy dependence of sensitized TLD phosphors. Nucl. Instrum. Methods 171, 259-263.
- [17] Gangang Cai (1995) The influence of the grain size of LiF:Mg,Cu,P thermoluminescent material on photon energy response and dose response. J. Phys. D: Appl. Phys. 28, 1259-1262.
- [18] Azorín J. (1990) Luminescence Dosimetry. Theory and Applications. Edit. Técnico-Científicas. México, D.F.
- [19] McKinlay A.F. (1981) Thermoluminescence dosimetry. Medical Physics Handbook 5. Adam Hilger Ltd, in Great Britain. pp-169.
- [20] Oberhofer M. and Scharman A. (1981) Applied TL dosimetry. ECSC, EEC, EAEC, Brussels and Luxemburg
- [21] Goldberg P. (1966) Luminescence of inorganic solids. Academic Press. New York and London.
- [22] Aitken, M.J. (1974) Physics and archaeometry. Oxford University Press, London. Ed. 2
- [23] Lamarsh J.R. (1975) Introduction to nuclear engineering. Eddison-Wesley Publishing Company, Massachusetts. pp-689.
- [24] Johns H.E. and Cunningham J.R. (1983) The physics of radiology. Charles C. Thomas Publisher, Illinois U.S.A. Fourth Edition. pp-796.
- [25] International Atomic Energy Agency (IAEA) (2000) Absorbed dose determination in external beam radiotherapy. An International Code of Practice for Dosimetry Based on Standards of Absorbed Dose to

Water. Technical Reports Series No. 398.

- [26] Urbach E. Luminescence of alkali halides. *Sber. Akad. Wiss. Wien . Abt. IIa* 139, 363, 1930.
- [27] Hoogenstraaten W. (1958) Electron traps in zinc sulphide phosphors. *Philips Res. Rept.* 13, 515.
- [28] Chen R. (1984) Kinetics of thermoluminescence glow peaks in: *Thermoluminescence and thermoluminescent dosimetry* (Ed. Y. S. Horowitz, CRC Press, Boca Raton).
- [29] López E.J. (1994) Ajuste del modelo de Chen de orden cinético general, aproximado a la Podgorsak, a datos experimentales de dosímetros TL. Informe Técnico-Científico No. DSICGI-03-94/A, ININ.
- [30] Bhuwan Chandra, Lakshmanan A. R., Shinde S. S. and Bhatt R. C. (1986) The role of vacancies in the thermoluminescence of LiF: Ti and CaSO<sub>4</sub>: Dy. *Radiation Protection Dosimetry.* 17, 451-454.
- [31] Weizman Y., Horowitz Y.S. and Oster L. (1999) Investigation of the composite structure of peak 5 in the thermoluminescent glow curve of LiF: Mg,Ti using optical bleaching. *J Phys. D* 32, 2118-2127.
- [32] Grant R. M. and Cameron J. R. (2009) Effects of Pre- irradiation annealing on the thermoluminescence and dielectric loss LiF: Mg. *Journal of Applied Physics.* 3791-3795.
- [33] Kozakiewicz. A. G., Davidson T. A. and Wilkinson D. J. (2000) The effect of pre- irradiation annealing on TL glow curves of LiF (Mg). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.* 577- 580.
- [34] Bos A. J.J. (2007) Theory of thermoluminescence. *Radiation Measurements.* 45-56.
  
- [11] Ernest M., Levin Carl, Robbins R. and Howard F. McMurdie (1969) *Phase diagrams for ceramists volume II.*
- [12] Horowitz Y.S. and Yossian D. (1995) Computerized glow curve deconvolution: Application to thermoluminescence dosimetry. *Radiat. Prot. Dosim.* 60(1), 5-19.
- [15] Department of the Army U.S. Army Corps of Engineers (1997) *Radiation Protection Manual.*
- [16] Khan F. M. (2003) *The Physics of Radiation Therapy.* 3th Ed.
- [18] Furetta C. (2003) *Handbook of thermoluminescence.* World Scientific.
- [29] Gaona E. (1984) Mathematical model associate with calibration curve in thermoluminescent dosimetry. *Inter-American Meeting of Medical Physics. Chicago, Illinois, E.U.A. Medical Physics,* 11(3).
- [38] Rogalev .B, Chernov. V. (1994) Dose dependences of creation of magnesium centres in LiF:Mg crystals under thermal neutron. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.* 505-508.
- [41] Patterson A. L. (1939). The Scherrer formula for X- Ray particle size determination. *Physical review.* 977-981.
- [43] Gonzalez P.R., Azorín J. (2001) Thermoluminescent response of LiF:Mg, Cu, P +PTE prepared in Mexico to <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y beta particles. *Radiation Physics and Chemistry.* 61, 425-427.
- [44] Gonzalez P.R, Quiroz M.C., Azorín J., Furetta C. and Avila O. (2005) Improvement in the preparation method of LiF:Mg, Cu, P. *Thermoluminescent phosphors. Journal of applied Sciences.*
- [45] Gonzalez P.R, Furetta C. and Azorín J. (2007) Comparison of TL responses of two different preparation of LiF:Mg,Cu,P irradiated by photons of various energies. *Applied Radiation and Isotopes.* 65, 341-344.
- [46] Gonzalez P.R, Furetta C. and Azorín J. (2011) Heating rate effect on thermoluminescence glow curve of LiF:Mg,Cu,P+PTFE phosphor. *Applied Radiation and Isotopes.* 1369-1373.

# APÉNDICE A

Método de deconvolución de la curva TL desarrollado por José López Estrada en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares.

El método desarrollado por José López y colaboradores [35] se basa en el algoritmo matemático conocido como programación cuadrática secuencial, empleando el modelo que ellos bautizaron como Chen aproximado a la Podgorsak de orden cinético general. Este algoritmo fue programado en Fortran 77 de Microsoft.

La grafica de la curva TL la obtuvieron cambiando el número de canal por su respectiva temperatura en Kelvin usando el programa en Fortran 77 llamado: "PCSDTLA.FOR". Después se procesaron estos datos en Excel para obtener finalmente la grafica. La función analítica que describe la curva TL experimental deconvolucionada o con picos separados es la siguiente:

$$f(T, x) = fondo(T, x) + \sum_{j=1}^{np} I_j(T, x) \quad (A.1)$$

Esta función  $f$  depende de la temperatura ( $T$ ) y del número de parámetros ( $x$ );  $I_j(T, x)$  es la intensidad TL del  $j$ -ésimo pico;  $np$  es el número de picos. La función para el fondo es de la forma:

$$fondo(T, x) = x_1 + x_2 \exp(x_3 T) \quad (A.2)$$

La adecuada sustracción del fondo es decisiva para la reducción de la dosis mínima medida, que se obtiene con métodos de deconvolución, ya que cuando la curva TL es una función no lineal de los parámetros  $E$ ,  $s$  y  $n_0$  y tiene  $np$  picos, el número de parámetros desconocidos será  $4(np)+3$  donde los tres parámetros adicionales surgen del ajuste del fondo. Por tanto, de la ecuación (B.1), el modelo completo para ajustar los datos de la curva TL experimental es:

$$I(T, X) = x_1 + x_2 \exp(x_3 T) + \sum_{j=1}^{np} I_j(T; x_{4j}, x_{4j+1}, x_{4j+2}, x_{4j+3}) \quad (A.3)$$

Donde:

$$X = x_1, x_2, x_3, \dots, x_n$$

$$n = 4(np) + 3$$

$$x_{4j} = s_j$$

$$x_{4j+1} = n_{0j}$$

$$x_{4j+2} = b_j$$

$$x_{4j+3} = E_j$$

$$j = 1, \dots, np$$

Denotemos ahora a los  $m$  datos experimentales por  $(T_i, y_i)$  para  $i = 1, 2, 3, \dots, m$ ; con lo que la función de aproximación es:

$$H(X) = \sum_{i=1}^m \frac{[y_i - I(T_i, X)]^2}{|I(T_i, X)|} \quad (\text{A.4})$$

Para desarrollar este método de deconvolución se basaron en la fórmula analítica para un sólo pico de una cinética de orden general, propuesta por Chen. Cuya expresión es:

$$I(T) = \frac{s * n_0^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s * (b-1)n_0^{b-1}}{R} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{ku}\right) du\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (\text{A.5})$$

Donde:

- $T_0$  temperatura inicial en Kelvin
- $T$  Temperatura en Kelvin
- $k$  constante de Boltzman
- $R$  rapidez de calentamiento en Kelvin/segundo

Los parámetros a determinar son:

- $S^*$  factor pre-exponencial ( $\text{cm}^{3(b-1)}/\text{segundos}$ )
- $n_0$  concentración de electrones atrapados inicialmente ( $\text{cm}^{-3}$ )
- $b$  orden cinético- su valor esta en el intervalo  $[1, 2]$
- $E$  energía de activación (eV)

El factor pre-exponencial está relacionado con el factor de frecuencia por la siguiente expresión:

$$s = s * n_0^{(b-1)} \quad (\text{A.6})$$

Sin embargo, cada uno de los cuatro parámetros a determinar en la expresión (B.5) no están relacionados en forma explícita con la posición y la altura del pico, es decir, cuando se mueve alguno de los valores de los cuatro parámetros se mueven tanto la posición como la altura del pico correspondiente. Por lo que López, optó por la siguiente expresión:

$$I(T) = \frac{I_m \exp\left(\frac{E}{kT_m} - \frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \left(1 - \frac{1}{b}\right) \left(\frac{E}{kT_m^2}\right) \int_{T_m}^T \exp\left(\frac{E}{kT_m} - \frac{E}{ku}\right) du\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (\text{A.7})$$

La expresión anterior esta en términos de: la temperatura donde el pico alcanza la máxima intensidad  $T_m$ , la máxima intensidad  $I_m$ , el orden cinético  $b$  y de la energía de activación  $E$ . Sin embargo, al aproximar el

integrando en la ecuación (B.7) con una serie de Taylor truncada hasta el término de primer grado, se obtiene una expresión aproximada a la ecuación (B.8):

$$I(T) = \frac{I_m \exp(W(T - T_m))}{\left[ \frac{1}{b} + \left(1 - \frac{1}{b}\right) \exp(W(T - T_m)) \right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (\text{A.8})$$

Donde:

$$W = \frac{E}{kT_m^2}$$

Como puede observarse, la ecuación (B.8) para un pico, es más fácil de evaluar, ya que, no aparece ninguna integral a calcular numéricamente, además ya se tiene relación gráfica con dos de los parámetros,  $T_m$  e  $I_m$ ; así se podrán dar estimaciones iniciales de estos parámetros a partir de la curva TL obtenida de los resultados experimentales.

Con respecto a los parámetros  $b$  y  $E$  se conocen los rangos para estos,  $b$  gobierna los semianchos izquierdo y derecho de los picos en la curva TL, sus variables están entre 1 y 2, se puede iniciar con 1.5;  $E$  gobierna el ancho total de cada pico, sus valores están entre 0.5 y 3.0 eV, se puede iniciar con 1.0 si el pico es ancho y con 1.7 o más si el pico es estrecho. A partir de los parámetros:  $T_m$ ,  $I_m$ ,  $b$  y  $E$ , se pueden obtener los parámetros:  $s$ ,  $s^*$ , y  $n_0$ , es decir, existen funciones para calcular los dos últimos parámetros cuyas reglas de correspondencia dependen de los cuatro primeros.