

TESIS  
MAESTRÍA EN FÍSICA MÉDICA

**DECONVOLUCIÓN COMPUTARIZADA DE  
LA CURVA GLOW DE DOSÍMETROS  
TERMOLUMINISCENTES.  
APLICACIÓN EN DOSIMETRÍA PERSONAL  
Y AMBIENTAL.**

**Ing. Pablo Andres**

**Ing. Eduardo Scarnichia**  
DIRECTOR

**Ing. Pablo Andres**  
MAESTRANDO

Instituto Balseiro  
Comisión Nacional de Energía Atómica  
Universidad Nacional de Cuyo

Diciembre 2009

A mis padres.

A mis hermanos.

Agradecimientos.

Eduardo Scarnichia

Izhar Levanon

Carlos Miani

## **RESUMEN**

La deconvolución es la técnica más utilizada en el análisis de la curva glow para obtener información sobre los parámetros que caracterizan los centros trampa involucrados en la emisión de luz (energía de activación, cinética, frecuencia de escape, etc.). La deconvolución computarizada de la curva glow (CGCD) es un método matemático que permite la discriminación de los diferentes picos que conforman la curva glow de los dosímetros termoluminiscentes. En el rango de dosis de la dosimetría personal ( $< 10$  mSv) el principal aporte de la CGCD es la reducción a la mitad del tiempo de lectura de dosímetros, lo cual es muy beneficioso en servicios de dosimetría con varias decenas de usuarios. En otras aplicaciones, como el cálculo de la dosis mínima detectable, precisión, dosimetría de campos mixtos, cálculo del tiempo transcurrido desde una irradiación, los resultados alcanzados son similares a los obtenidos con un método estándar. Esto se debe a que los bajos niveles de la señal dosimétrica se ven influenciados por la radiación ambiental de fondo, lo que ocasiona curvas con mayor componente de ruido.

*Palabras clave* – deconvolución, curva glow, dosimetría, radiación ionizante, TLD.

## **ABSTRACT**

Deconvolution is an ordinary tool used in glow curve analysis in order to obtain information about the parameters that characterize the trap centres involved in light emission (activation energy, kinetics, frequency factor, etc.). Computerized glow curve deconvolution (CGCD) is a mathematical method that makes discrimination of different peaks shaping thermoluminescent dosimeters glow curve possible. When working in a personal dosimetry range ( $< 10$  mSv), reduction of dosimeters readout time is CGCD's main contribution, which is very useful in a several-tens-users dosimetry service. In other applications, such as computing minimum measurable dose, precision, mixed fields dosimetry, estimation of elapsed time following irradiation, the results are similar to those obtained by a standard method, since low dosimetry signals are very influenced by background radiation.

*Key words* – deconvolution, glow curve, personal dosimetry, ionizing radiation.

## ÍNDICE

<b>1. Termoluminiscencia y detectores termoluminiscentes</b>	
1.1 Termoluminiscencia	1
1.2 Detectores termoluminiscentes	5
1.2.1 Ventajas	5
1.2.2 Desventajas	6
<b>2. Teoría general de la curva glow</b>	
2.1 Cinética de primer orden de Randall y Wilkins	8
2.2 Cinética general. Ecuaciones de Halperin-Braner	13
2.3 El modelo de orden mixto	17
2.4 Modelos que involucran una distribución continua de los estados trampa	17
2.5 Comentarios finales sobre la cinética TL	18
<b>3. Aspectos matemáticos de la deconvolución computarizada de la curva glow</b>	
3.1 Las integrales en la teoría TL	20
3.2 Aproximación a la curva glow	23
<b>4. Deconvolución de la curva glow de varios materiales TLD</b>	
4.1 Introducción	27
4.2 Materiales y métodos	27
4.3 Deconvolución de la curva glow	29
<b>5. Aplicaciones de la CGCD a la dosimetría termoluminiscente</b>	
5.1 Incertidumbre a bajas dosis (< 10 mGy) y dosis mínima detectable	36
5.1.1 Determinación de la señal de fondo	36
5.1.2 Recta de calibración y dosis mínima detectable	36
5.1.3 Incertidumbre del sistema para bajas dosis	39
5.2 Estimación del tiempo transcurrido desde la irradiación	40
5.3 CGCD aplicado a dosimetría de campos mixtos	44
5.4 Cálculo de las correcciones por fading para LiF700H	46
<b>6. Conclusiones</b>	50

## **CAPÍTULO 1**

**“TERMOLUMINISCENCIA**

**Y**

**DETECTORES TERMOLUMINISCENTES”**

---

## Termoluminiscencia y detectores termoluminiscentes

---

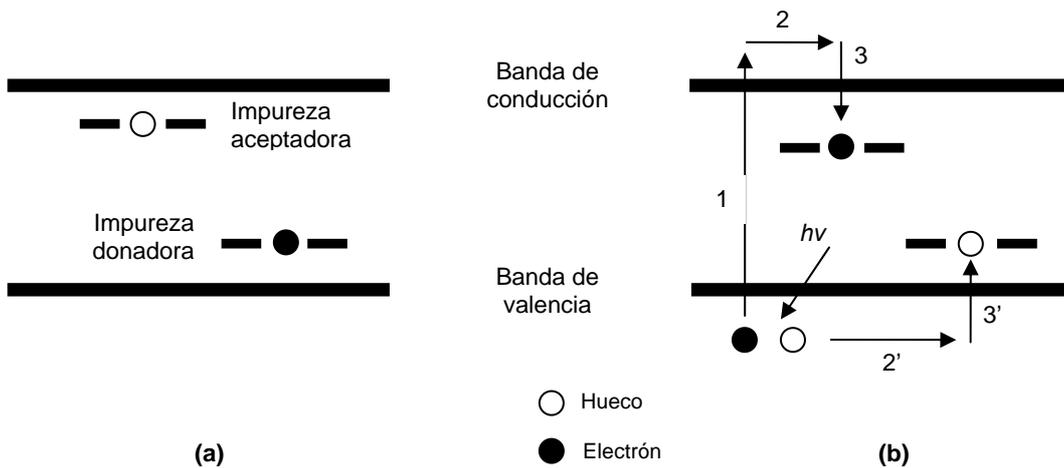
### 1.1. Termoluminiscencia

Los detectores termoluminiscentes se basan en el fenómeno de la termoluminiscencia. Este fenómeno consiste en el almacenamiento de energía por parte de ciertos cristales minerales cuando son expuestos a radiación ionizante, y en su posterior emisión al experimentar un proceso de calentamiento. Ya en 1953 se propuso que el fenómeno de la termoluminiscencia podría ser usado como detector de la radiación.

En una red cristalina inorgánica perfecta aparece una estructura de bandas característica. Está compuesta por una banda de valencia, formada por electrones ligados a los átomos, y una banda de conducción en la que los electrones se encuentran desligados y se pueden mover libremente. Entre ambas bandas se encuentra una zona de estados energéticos no permitidos, conocida como banda prohibida. Si se introducen ciertas impurezas que sustituyan a átomos o moléculas de la red cristalina se pueden crear estados intermedios en la banda prohibida. Un cristal termoluminiscente, TL, típico se dopa con impurezas aceptadoras que crean estados permitidos para electrones próximos a la banda de conducción, y además con impurezas de tipo donador, que presentan una gran facilidad para ceder uno de sus electrones, creando estados electrónicos próximos a la banda de valencia, como se muestra en la figura 1.1.a. A temperatura ambiente, en un cristal TL la densidad de electrones en la banda de conducción es muy reducida, al igual que la densidad de huecos o vacantes en la banda de valencia.

El proceso de sensibilización de un cristal termoluminiscente se basa en la creación de pares electrón-hueco. Al incidir la radiación ionizante sobre un cristal termoluminiscente, se excitan los electrones de la banda de valencia y promocionan a la banda de conducción (1), como se muestra en la figura 1.1.b. El electrón se mueve libremente por la banda de conducción (2), hasta que es atrapado en las trampas (3) creadas por las impurezas aceptadoras. Al mismo tiempo, el hueco se va desplazando por la banda de valencia (2'), hasta que un electrón de las impurezas donadoras pierde parte de su energía y se recombina con él (3'). Al final del proceso de sensibilización

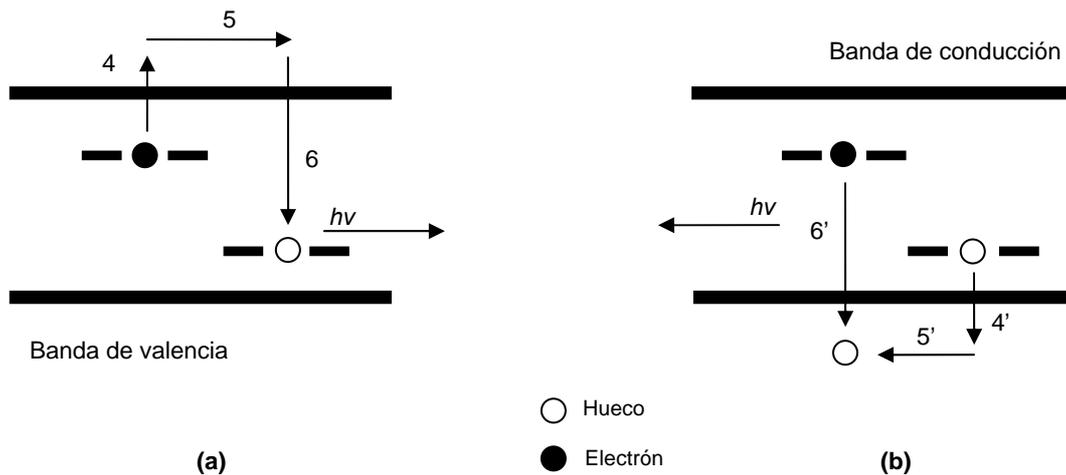
los electrones desplazados por la radiación quedan atrapados en las impurezas aceptadoras próximas a la banda de conducción, y los huecos, en las impurezas donadoras en las proximidades de la banda de valencia. A temperatura ambiente pueden permanecer en este estado durante largos períodos de tiempo sin que se presente de forma apreciable la vuelta a estados no excitados o recombinación de electrones y huecos.



**Figura 1.1.** Diagrama de bandas de un cristal termoluminiscente sin sensibilizar (a), y durante el proceso de sensibilización (b).

Se puede medir la energía absorbida por el cristal invirtiendo el proceso de sensibilización. Elevando la temperatura, se incrementa la excitación térmica de los portadores atrapados en los estados de la banda prohibida, pudiendo escapar de dichos estados y recombinarse. Este proceso de recombinación de los pares se puede realizar mediante dos vías:

- Mediante liberación de electrones, que se caracteriza por tener un estado intermedio en el que un electrón se desplace por la banda de conducción, como se muestra en la figura 1.2.a.
- Por liberación de huecos, proceso en el cual se produce un estado intermedio en el que una vacante se mueve por la banda de valencia, como se aprecia en la figura 1.2.b.



**Figura 1.2.** Proceso de termoluminiscencia:  
 (a) por liberación del electrón, (b) por liberación del hueco.

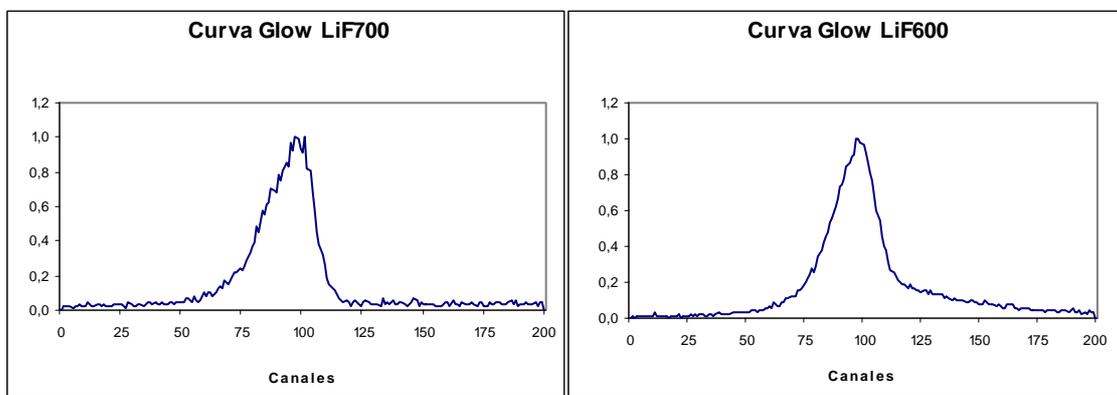
En un cristal TL, la diferencia de energía necesaria para activar un método de recombinación u otro será diferente, por lo que durante el calentamiento, predominará a temperaturas más bajas aquel proceso que necesite proporcionar a los electrones una menor energía. Tanto si la recombinación se debe a la liberación de huecos, como a la liberación de electrones, se produce una recombinación de pares en la que la diferencia de energía del estado inicial y el final es del orden de 3-4 eV, por lo que el fotón emitido se encuentra dentro del espectro visible.

Estos fotones emitidos en el espectro visible, son amplificados mediante un fotomultiplicador y registrados durante un tiempo determinado. Si el cristal se calienta a una temperatura demasiado baja, producirá una emisión electromagnética muy débil, ya que la probabilidad de que los electrones escapen de los estados intermedios en los que se encuentran atrapados será prácticamente nula. Al incrementar la temperatura, aumenta el número de electrones que escapa de los estados intermedios, produciéndose un incremento de la intensidad registrada. En el proceso de emisión se alcanzan uno o varios máximos de emisión luminosa, hasta alcanzar el punto en el que prácticamente la totalidad de los electrones, que en un principio se encontraban atrapados en los estados intermedios se han recombinado, cesando la emisión. La representación de la intensidad luminosa frente a la temperatura de calentamiento se conoce como curva de emisión o curva *glow*, y presenta una serie de máximos a unas temperaturas determinadas característicos de cada material termoluminiscente. Los máximos relativos de emisión lumínica a temperaturas superiores se deben a promociones electrónicas de mayor

energía. En la figura 1.3 se presenta la curva de emisión para los materiales TL más comunes.

La curva *glow* presentará tantos máximos como niveles de trampas capaces de aceptar electrones estén disponibles en el material TL, y sus alturas serán proporcionales al número de electrones que han ocupado cada uno de los diferentes niveles de trampas.

En el proceso de medida se ha de tener en cuenta que la intensidad luminosa emitida a cada temperatura de calentamiento presenta una fuerte dependencia temporal. Según va transcurriendo el tiempo, a cierta temperatura, se va recombinando mayor número de pares correspondientes a las trampas electrónicas hasta agotarse, cesando la emisión de fotones.



**Figura 1.3.** Curva *glow* de LiF700 y LiF600.

Tanto la altura de los diferentes máximos como la totalidad de la luz emitida pueden usarse como parámetros dosimétricos. Para obtener una lectura de la dosis debemos devolver el cristal termoluminiscente a su estado inicial, en el que se encuentren huecos en las trampas aceptadoras y electrones en las donadoras. Esto presenta el inconveniente de que la lectura de la dosis es destructiva, pero a su vez permite reutilizar el cristal tantas veces como sea necesario.

En un material TL no es necesaria conexión alguna para el almacenamiento de dosis, lo que acompañado a su amplio rango de dosis hace que se use de forma extendida como dosímetros, tanto personales como ambientales. A este tipo de dosímetro se le conoce como dosímetro termoluminiscente o TLD (por sus siglas en inglés, *Thermoluminescence Dosimeter*). El principal inconveniente que presentan es el complejo proceso de medida, que imposibilita las medidas en tiempo real.

## 1.2. Detectores termoluminiscentes (TLD)

El propósito de este apartado es resumir someramente las principales ventajas y desventajas de los dosímetros termoluminiscentes.

### 1.2.1 Ventajas

- Son de pequeñas dimensiones ( $3 \times 3 \times 1 \text{ mm}^3$ ) y bajo peso (10 mg aprox.) por lo que pueden ser utilizados en lugares muy reducidos.
- Son utilizables en un amplio rango de dosis (10  $\mu\text{Gy}$  – 100 kGy).
- El número atómico de la mayoría de los detectores es similar al del tejido equivalente. Para fluoruro de litio (LiF), el número atómico efectivo es 8,3 y para el tejido humano, 7,3.
- La persistencia de la señal termoluminiscente por largos períodos permite la medición en el momento conveniente, luego de la irradiación. Esto es de particular importancia en el caso de dosimetría personal y ambiental.
- La eficiencia termoluminiscente es independiente de la tasa de dosis (dentro del 5%) desde las bajas hasta las altas tasas de dosis. La eficiencia termoluminiscente es el cociente entre la energía emitida como luz termoluminiscente y la energía media impartida al material TL por el campo de radiación.
- La eficiencia termoluminiscente es independiente de la temperatura de irradiación (en condiciones normales de trabajo), hecho que no sucede en otro tipo de dosímetro, por ej.: dosímetros químicos.
- Se pueden obtener precisiones mejores al 3% (eventualmente 1% ó 2% en sistemas optimizados) para dosis en el rango de 0,1 mGy a 10 Gy (suficiente en la mayoría de las aplicaciones de radioterapia, radiobiológicas y de dosimetría personal).
- Los TLD son insensibles a la mayoría de los agentes ambientales (humedad, luz, la mayoría de los vapores de laboratorio, etc.).
- La señal TL es relativamente simple de evaluar y lleva a la automatización del método.
- Pueden ser usados en varias formas para la medición de la mayoría de los tipos de radiación, con la posibilidad de la discriminación en campos mixtos tales como beta-gamma ( $\beta\text{-}\gamma$ ) o neutrón-gamma ( $n\text{-}\gamma$ ).

- Son dosímetros portátiles. Son ideales para monitoreo de extremidades.
- Su lectura es rápida (<30 s) y no requiere procesos de laboratorio.
- Pueden ser reutilizados docenas o cientos de veces con sólo pequeños cambios en su eficiencia.
- Disponibilidad de distintos tipos de dosímetros con diferentes sensibilidades a neutrones térmicos: TLD-700 ( $^7\text{LiF}$  99,99%); TLD-100 (93%  $^7\text{LiF}$  y 7%  $^6\text{LiF}$ ); TLD-600 (96%  $^6\text{LiF}$ ).

### 1.2.2 Desventajas

- No es un dosímetro absoluto, necesita su calibración en un campo de referencia patrón, con el consiguiente incremento del error.
- Efectos de superficie. Varios mecanismos dependientes de la superficie pueden afectar la sensibilidad TL. Los más importantes son los cambios en la transmisión luminosa debido a contaminación, ralladuras y a la absorción gaseosa que puede también alterar la eficiencia intrínseca o dar lugar a señales no inducidas por radiación.
- Inhomogeneidad del lote o *batch*. La eficiencia TL así como su respuesta dependen en gran medida en la distribución espacial de la concentración de trampas. Como los defectos son dependientes de las impurezas en un nivel de partes por millón así como, en menor medida, de su historia radiante y térmica, es muy difícil fijar las propiedades de un material TL. Esto conduce a efectos de lote. Para obtener una óptima precisión se deben realizar calibraciones individuales de cada dosímetro.
- Los dosímetros irradiados no mantienen permanentemente toda la información entregada, dando como resultado una pérdida gradual de la señal latente termoluminiscente (*fading*). Este hecho debe ser corregido conociendo cuál es la pérdida de información en función del tiempo o en su defecto adoptándose tratamientos térmicos previos a la evaluación.
- “Memoria” de la radiación e historia térmica. La sensibilidad puede tanto aumentar como disminuir después de recibir una dosis grande de radiación. A veces es posible restituir la sensibilidad original luego de varios tratamientos térmicos, en su defecto los dosímetros involucrados son descartados del lote.

- Pérdida de la información. El método de obtención de la información es destructivo; si por algún motivo (ej.: mal funcionamiento del fototubo) la lectura no es recibida por el sistema, la información de ese dosímetro se pierde.

## **CAPÍTULO 2**

### **“TEORÍA GENERAL DE LA CURVA GLOW”**

---

## Teoría general de la curva glow

---

### 2.1. Cinética de primer orden de Randall y Wilkins

Randall y Wilkins<sup>(1)</sup> fueron los primeros en desarrollar una teoría para la liberación térmica de electrones para un pico *glow* aislado, originándose del atrapamiento de electrones en un nivel discreto de energía debajo de la banda de conducción. La teoría se basa en las siguientes suposiciones:

- i. Los electrones en las trampas tienen una distribución de Maxwell de energías térmicas; de ahí la probabilidad  $p$  de que un electrón escape de una trampa de profundidad  $E$  (energía de activación, eV) a una temperatura  $T$  (K) está dada por la ecuación de Arrhenius:

$$p = S \exp(-E/kT) \quad (2.1)$$

donde  $S$  ( $s^{-1}$ ) es el factor frecuencia o factor pre-exponencial y  $k$  es la constante de Boltzmann.

- ii. Una vez que los electrones han sido liberados de la trampa en la banda de conducción, la probabilidad de reatrapamiento es despreciable. En este caso:

$$dn/dt = -nS \exp(-E/kT) \quad (2.2)$$

donde  $n$  es el número de electrones en las trampas en el momento  $t$ .

- iii. Todas o una fracción constante de las cargas liberadas encuentran su camino a los centros de recombinación luminiscente.
- iv. La vida total de los electrones en la banda de conducción es corta, es decir, no hay acumulación de carga en la banda de conducción.
- v. La eficiencia de luminiscencia de los centros de recombinación es independiente de la temperatura
- vi. Las concentraciones totales de trampas y centros de recombinación son independientes de la temperatura.

Con todas estas suposiciones, se puede escribir que la intensidad termoluminiscente,  $I(t)$ , es proporcional a la tasa de suministro de electrones a los centros luminiscentes.

$$I = -c(dn/dt) = cnS \exp(-E/kT) \quad (2.3)$$

En el caso de calentamiento lineal,  $T = T_0 + \beta T'$ , donde  $T_0$  es la temperatura inicial y  $\beta$  es la tasa de calentamiento ( $\text{K}\cdot\text{s}^{-1}$ ), se obtiene:

$$I(T) = cSn_0 \exp(-E/kT) \exp(-S/\beta) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT') dT' \quad (2.4)$$

Este es el ejemplo más simple de la forma lineal requerida para un único pico *glow* el cual se basa en un modelo físico realista (aunque altamente simplificado). Se han utilizado diferentes clases de funciones de calentamiento (notablemente, la función de calentamiento hiperbólico que simplifica la solución de la ecuación (2.3)); no obstante, la mayoría de los investigadores prefiere la función de calentamiento lineal que es mucho más simple de generar experimentalmente. El término cinética de primer orden en la teoría TL es tomado de la química donde una reacción de primer orden es aquella en la cual la tasa es directamente proporcional a la concentración de un reactivo, en este caso,  $n$ , el número de electrones atrapados<sup>(2)</sup>. Debería notarse que  $I(T)$  en la ecuación (2.4) depende de dos parámetros físicos,  $E$  y  $S$ , y un parámetro experimental, la tasa de calentamiento, la cual se supone constante y también puede ser medida con mucha exactitud. También es de notar que en el rango de ocurrencia de los picos TL,  $E$  está típicamente alrededor de  $20kT$ . En consecuencia  $\exp(-E/kT)$  está en el orden de  $10^{-7}$ . Esto se multiplica por dos números muy grandes  $S$  y  $n$ , lo que da cuenta de los grandes, o al menos medibles, valores resultantes de la intensidad de emisión.

La dependencia de la eficiencia de luminiscencia en la ecuación (2.4) puede escribirse de manera más general de la siguiente manera:

$$I(T) = \phi(T)cn_0S(T) \exp(-E/kT) \exp(-S/\beta) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT') dT' \quad (2.4a)$$

donde  $\phi(T) = \tau(T)/\tau_r(T)$  es la eficiencia de luminiscencia y  $\tau_r$  es toda la vida de recombinación radiativa. (Nótese que  $1/\tau = 1/\tau_r + 1/\tau_{nr}$  donde  $\tau_{nr}$  es el tiempo de vida de recombinación no radiativa).

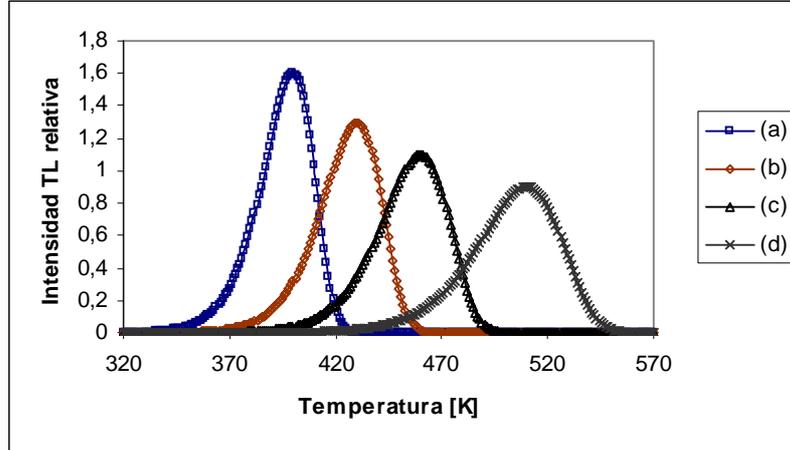
Randall y Wilkins dieron un significado físico a  $S$  en el contexto de su modelo. Describieron la trampa como un pozo de potencial donde  $S$  es el producto de la frecuencia con la cual los electrones golpean las paredes de la barrera de potencial y el coeficiente de reflexión. Por lo tanto, debería esperarse que  $S$  sea un orden de magnitud menor que la frecuencia vibracional del cristal, es decir, aproximadamente  $10^{12} \text{ s}^{-1}$ . Un modo alternativo de ver  $S$  es igualarlo al producto  $N_c\sigma\nu$  donde  $N_c$  es la densidad de

estados en la banda de conducción,  $\sigma$  es la sección eficaz de captura de los electrones y  $v$  es la velocidad del electrón dentro de la banda de conducción. También en este caso se espera que  $S$  caiga entre  $10^8$  y  $10^{14}$  s<sup>-1</sup>. En realidad, se han encontrado valores varios órdenes de magnitud menores. Irónicamente, el pico usado con mayor frecuencia en TLD (pico 5) posee un valor de  $S$  reportado por muchos de aproximadamente  $10^{20}$  s<sup>-1</sup> (cuando  $S$  se deduce por técnicas de conformación de picos) y el mecanismo requerido para generar ese valor alto de  $S$  todavía es tema de mucha especulación. En principio,  $E$  y  $S$  también pueden ser dependientes de la temperatura y se ha demostrado<sup>(3)</sup> que la suposición usual de un factor de frecuencia independiente de la temperatura puede conducir a errores en  $E$  tan altos como 10% para  $E/kT_m = 20$ , disminuyendo a un 3% para  $E/kT_m = 80$ . Nótese también que  $I(T)$  en la ecuación (2.4) es directamente proporcional a  $n_0$ , que es el parámetro asociado con la dosis absorbida. De hecho, también se muestra fácilmente que el área bajo el pico *glow* es igual a  $n_0$  lo cual conforma la base teórica de TLD.

La inspección de la ecuación (2.4) puede dar alguna idea de la forma esperada del pico *glow*. Cuando  $T$  es ligeramente mayor que  $T_0$ , el argumento del segundo exponente es muy pequeño y, en consecuencia, el valor de la función exponencial está cercano a la unidad y varía muy lentamente con la temperatura. La dependencia con la temperatura de  $I(T)$  está, por lo tanto, dominada por la primera función exponencial, la cual es obviamente una función de la temperatura rápidamente creciente. La segunda función exponencial de la ecuación (2.4), sin embargo, disminuye con el aumento de la temperatura y a temperaturas mayores disminuye muy rápidamente. A una cierta temperatura, el comportamiento de las dos funciones exponenciales se cancela, y en este punto, ocurre la intensidad máxima del pico. Por encima de esta temperatura, la disminución en la segunda función exponencial es más rápida que el aumento en la primera función exponencial, y la función producto disminuye hasta que las trampas se vacían completamente. Esto corresponde al final del pico. La misma explicación cualitativa se aplica también a los casos que no sean de primer orden. Picos TL típicos se muestran en las figuras 2.1 y 2.2 para varios valores de  $E$  y  $S$ . Los picos muestran la típica forma asimétrica de la cinética de primer orden. La asimetría es tal que la disminución a temperaturas por encima del máximo  $T_m$  es más rápida que el aumento a bajas temperaturas. La temperatura a  $T_m$  máximo puede encontrarse fácilmente igualando a cero la derivada de  $\ln I(T)$  de la ecuación (2.4). Esto resulta:

$$\beta E / (kT_m^2) = S \exp(-E/kT_m) \quad (2.4b)$$

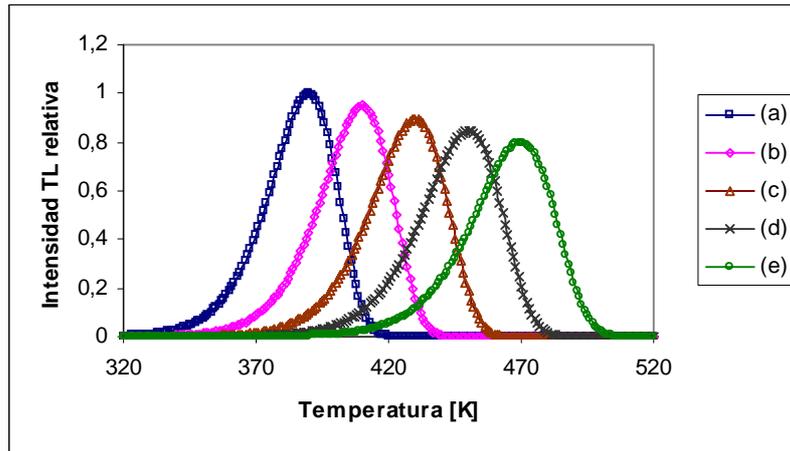
De esta ecuación se puede ver fácilmente que  $T_m$  aumenta con el incremento de  $E$ . De hecho, de la figura 2.1 para  $E \gg kT_m$ , se puede ver que  $T_m$  aumenta casi linealmente con  $E$ .



**Figura 2.1.** Picos TL calculados usando la teoría cinética de primer orden de Randall y Wilkins.  $E$  es igual a 1.1 eV para todos los picos y  $S$  varía de  $10^{10} \text{ s}^{-1}$  a  $10^{13} \text{ s}^{-1}$ : (a)  $10^{13} \text{ s}^{-1}$ , (b)  $10^{12} \text{ s}^{-1}$ , (c)  $10^{11} \text{ s}^{-1}$ , (d)  $10^{10} \text{ s}^{-1}$ . Nótese la forma asimétrica de los picos *glow*. También nótese el aumento del ancho y el desvío a temperaturas más altas a medida que aumenta  $S$ .

Esto, por supuesto, está en concordancia con el modelo físico que, para trampas más profundas, se requiere más energía y consecuentemente una mayor temperatura para liberar a los electrones. En el caso particular de la cinética de primer orden, cambiar la concentración inicial,  $n_0$ , no cambia la forma del pico *glow* para nada, pues variar  $n_0$  altera la intensidad a cada temperatura en la misma proporción. Uno de los aspectos de este hecho es que la temperatura máxima  $T_m$  es independiente de la concentración inicial  $n_0$ . Esta propiedad de la independencia de  $T_m$  de  $n_0$  es específica del caso de primer orden y no ocurre para la mayoría de las otras posibilidades cinéticas.

Es importante mencionar que el “reatrapamiento despreciable” en la teoría de los mecanismos TL puede provenir de varias circunstancias físicas. Uno de los modelos<sup>(4)</sup> actuales más populares para el pico 5 en LiF:Mg,Ti (TLD-100) es el de un gran complejo de atrapamiento en el cual el electrón y el hueco son atrapados en una proximidad cercana a cada uno y el electrón liberado térmicamente tiene una alta probabilidad de recombinación con su opuesto atrapado y una probabilidad despreciable de migración a través del enrejado y recombinación en centros distantes de recombinación luminiscentes.



**Figura 2.2.** Picos TL calculados usando la teoría cinética de primer orden de Randall y Wilkins.  $S$  es igual a  $10^{12} \text{ s}^{-1}$  para todos los picos y  $E$  varía de 1.0 – 1.2 eV; (a)  $E = 1.0$  eV, (b)  $E = 1.05$  eV, (c)  $E = 1.1$  eV, (d)  $E = 1.15$  eV, (e)  $E = 1.2$  eV. Nótese el incremento en  $T_{max}$  a medida que aumenta  $E$ .

Por supuesto, la mayoría de las curvas *glow* TL tienen más de un pico *glow* y es una posibilidad razonable que los electrones liberados de un tipo de trampa de electrón sea reatrapado por otros tipos de trampas electrónicas antes de recombinarse. Esta posibilidad se ha denominado “cinética interactiva”<sup>(5)</sup>. Puede citarse un gran número de mediciones que muestran que ocurren interacciones entre diferentes tipos de trampas. Por ejemplo, exponer al sol algunos minerales antes de la medición TL introduce picos *glow* a temperaturas más bajas que aquellas exhibidas por muestras no expuestas. Existe un gran número de estudios de fototransferencia que muestran que las cargas liberadas desde un tipo de trampa son atrapadas en otros tipos de trampas. Es interesante notar que en TLD-100, la fototransferencia desde altas temperaturas repuebla el pico 5 pero no el pico 4. Esta observación está en línea con la observación general de que las interacciones entre diferentes tipos de trampas ocurren en sistemas TL exhibiendo valores no físicos de  $E$  y  $S$  y otras anomalías. En cualquier evento, es posible mostrar que cuando las secciones eficaces de reatrapamiento son muy pequeñas, o que cuando la sección eficaz de recombinación es muy grande, las ecuaciones de multi-trampas que describen las trampas interactivas se reducen a un conjunto de ecuaciones independientes de primer orden. Esto puede observarse, si se satisfacen las condiciones necesarias, como una justificación para analizar curvas *glow* con varios picos *glow* como componentes independientes de primer orden.

## 2.2. Cinética general. Ecuaciones de Halperin-Braner.

Retornando al modelo de un único electrón y un único hueco, Halperin y Braner<sup>(6)</sup> describieron el tráfico de los portadores de carga con las siguientes tres ecuaciones diferenciales.

$$I = -dm/dt = Amn_c$$

(2.5)

$$-dn/dt = Sn \exp(-E/kT) - n_c(N - n)B \quad (2.6)$$

$$dn_c/dt = Sn \exp(-E/kT) - n_c[mA + (N - n)B] \quad (2.7)$$

donde  $I$ ,  $N$ ,  $n$ , han sido definidos previamente, y  $m$  es el número de huecos en los centros de recombinación,  $n_c$  es el número de electrones en la banda de conducción.  $A$  y  $B$  determinan, respectivamente, la probabilidad (por segundo) para que un electrón liberado térmicamente sea capturado por un centro de recombinación y sea reatrapado.  $A$  y  $B$  se suponen independientes de la temperatura. La ecuación (2.5) expresa el hecho de que la tasa de recombinación debería ser proporcional al número de electrones libres y al número de centros de recombinación activos. La ecuación (2.6) establece que la tasa de cambio de  $n$  está dada por la tasa de liberación de electrones menos la tasa de reatrapamiento, y la ecuación (2.7) establece que la tasa de cambio de  $n_c$  está dada por la tasa de liberación de electrones menos la tasa de reatrapamiento y recombinación. Aún para este modelo altamente truncado (un centro de trampas y un centro de recombinación), hay ocho parámetros libres ( $E$ ,  $S$ ,  $A$ ,  $B$ ,  $N$ ,  $n_0$ ,  $m_0$ ,  $n_{c0}$ ) y, por supuesto, ninguna solución analítica general. Además, la posición y forma del pico TL son sensibles a  $E$  y  $S$ , pero mucho menos a  $A$ ,  $B$ ,  $N$ ,  $n_0$  y  $m_0$ <sup>(7)</sup>. Operacionalmente, esto significa que hay un número muy grande de combinaciones de estos parámetros que producen picos TL los cuales son similares en forma.

La probabilidad de reatrapamiento se demuestra más explícitamente en la ecuación (2.8)<sup>(6; 8)</sup>. Esta ecuación se deduce fácilmente de las ecuaciones (2.5), (2.6) y (2.7) bajo las siguientes suposiciones:  $n_c \ll n$ ,  $|dn_c/dt| \ll |dn/dt|$ ,  $n_c + n = m$ , donde para  $n_c = 0$  significa  $n = m$  y  $dn_c/dt = 0$ . Los argumentos usados para justificar estas suposiciones se encuentran usualmente en términos de “cuasi-equilibrio” y tiempo de vida electrónico en la banda de conducción<sup>(9)</sup>, pero pueden ser criticados en varios aspectos. Por ejemplo<sup>(7)</sup>, se puede mostrar a partir de las ecuaciones (2.6) y (2.7) que al inicio del ciclo de calentamiento,  $dn_c/dt = dn/dt$ , lo cual, en consecuencia, ciertamente

no es una cantidad despreciable. De manera similar, al final del ciclo de calentamiento,  $n_c = n$ . La ecuación (2.8), por lo tanto, debe ser inexacta cerca del inicio y del final del ciclo de calentamiento, y debería ser improbable, en consecuencia, o aún sin sentido físico, obtener una aproximación perfecta usando, por ejemplo, la expresión de primer orden de Randall-Wilkins dada en la ecuación (2.4). No obstante, usando estas aproximaciones, la intensidad TL está dada por

$$I(t) = -dn/dt = Sn \exp(-E/kT) \frac{Bm}{Bm + A(N-n)} \quad (2.8)$$

donde  $A$  y  $B$  pueden ser tomados iguales a los productos de la velocidad del portador de carga y la sección eficaz microscópica de captura. La ecuación (2.8) a menudo ha sido referida como la “ecuación general para una trampa TL”. Asumiendo  $A = 0$  (no existen reatrapamientos), o, de manera más general,

$$Bm \gg A(N-n) \quad (2.8a)$$

se llega a la cinética de primer orden (ecuación (2.4)). La inversa de la inecuación (alto reatrapamiento) combinada con la suposición  $n \ll N$  (y  $n = m$ ) conduce a la cinética de segundo orden (ecuación (2.9))<sup>(10)</sup>. También es importante mencionar, que en el rango de bajas temperaturas del pico *glow*, la inecuación (2.8a) se mantiene, y a temperaturas superiores, cuando  $m$  y  $n$  disminuyen, la inecuación se debilita y o puede incluso invertirse. Esto puede resultar en un desvío desde el comportamiento de primer orden a otro que no sea de primer orden dentro del mismo pico. Antes de proseguir, también es importante mencionar que en la ecuación (2.4) de primer orden, las constantes  $E$  y  $S$  se separan naturalmente y se pueden encontrar mejores valores de fiteo para estas constantes específicas. En la ecuación de segundo orden (2.10), las constantes obtenibles numéricamente son  $E$  y  $S'$  donde  $S' = n_0 S/N$  (una cantidad siempre menor que  $S$ ). Es posible reformular la ecuación (2.8) para obtener un número mínimo de constantes<sup>(11)</sup>:

$$I(T) = -dn/dt = n^2 P_1 \exp(-P_2/kT) (n + P_3)^{-1} \quad (2.8b)$$

donde  $P_1 = S(I-A/B)^{-1}$ ,  $P_2 = E$ , y  $P_3 = N(A/B)(I-A/B)^{-1}$ .

La ecuación de Garlick y Gibson para la cinética de segundo orden está dada por:

$$I(t) = -dn/dt = n^2 S' \exp(-E/kT) \quad (2.9)$$

donde  $S' = SA/NB$ . Si posteriormente se asume que  $A = B$ , entonces  $S' = S/N$ . La ecuación (2.9) también puede resolverse analíticamente para una tasa de calentamiento constante, produciendo

$$I(T) = n_0 S \exp(-E/kT) \left[ (S/\beta) \exp \int_{T_0}^T \exp(-E/kT') + 1 \right]^{-2} dT' \quad (2.10)$$

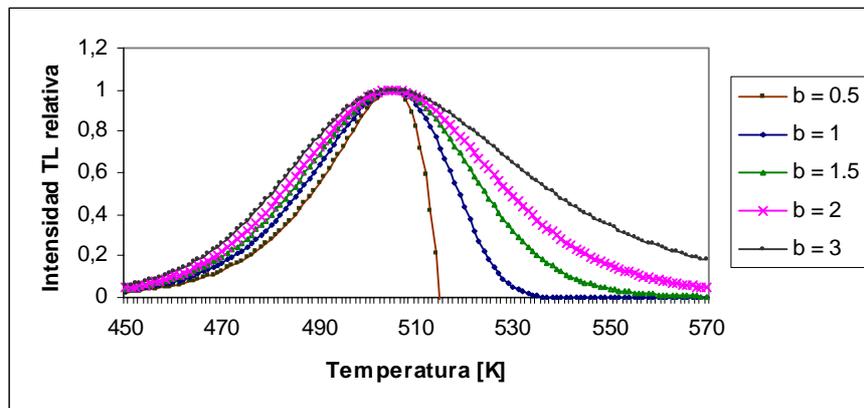
donde  $S$  está dada por  $S = S'n_0$ . Es importante notar que  $S$  tiene unidades de  $s^{-1}$  como el factor de frecuencia en la cinética de primer orden pero depende de  $n_0$ .  $S'$  es una constante (factor pre-exponencial) pero tiene dimensiones diferentes.

Claramente, la ecuación (2.8) también es capaz de generar un comportamiento cinético que no corresponda ni al caso de primer orden ni al de segundo orden. De hecho, las cinéticas de primer y segundo orden deberían considerarse sólo como casos límite que ocurren cuando existen ciertas relaciones especiales (como se describió más arriba) entre los parámetros de atrapamiento relevantes. La figura 2.3 muestra formas típicas de picos *glow* para varios valores de  $b$  (orden de la cinética), entre 0.5 y 3 para un pico *glow* con  $T_{max} = 505$  K y  $E = 1.5$  eV. Los picos *glow* se ensanchan progresivamente con el aumento del orden de la cinética (aumento del reatrapamiento) como es de esperar intuitivamente.

Cuando no se mantienen las suposiciones simplificadoras, el pico TL corresponderá a lo que se conoce como cinética de “orden general”. En este caso puede postularse<sup>(12)</sup> una relación empírica:

$$I(t) = -dn/dt = n^b S' \exp(-E/kT) \quad (2.11)$$

donde el orden de cinética,  $b$ , es un parámetro determinado empíricamente. Usualmente se supone que  $1 \leq b \leq 2$ , pero también se han encontrado picos TL con valores de  $b$  fuera de este rango. Es difícil, sin embargo, vislumbrar un modelo físico para el cual  $b > 2$ . Además, es posible mostrar que la ecuación (2.11) no puede deducirse de la ecuación



**Figura 2.3.** Picos TL de orden general con  $E = 1.5$  eV y  $T_{max} = 505$  K. Nótese el gran ensanchamiento de los picos a medida que aumenta el orden de la cinética,  $b$ , desde 0.5 hasta 3.

(2.8) tal que parece que la base para la cinética de orden parcial es totalmente empírica.

La solución de la ecuación (2.11) para una tasa de calentamiento constante es

$$I(T) = n_0 S \exp(-E/kT) \left[ (b-1) \left( S/\beta \right) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT') dT' + 1 \right]^{-b/(b-1)} \quad (2.12)$$

y aquí  $S$  se define como  $S = S' n_0^{b-1}$ . Como en el caso de cinética de primer orden (ecuación (2.4b)) el factor frecuencia,  $S$ , puede ser evaluado a partir de  $E$ ,  $b$  y la temperatura en el máximo,  $T_m$ . Igualando a cero la derivada de  $I(T)$  con respecto a  $T$ , y suponiendo  $S$  constante, se obtiene

$$S = \beta (bkT_m^2/E) \left[ \exp(-E/kT) - (b-1) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT') dT' \right]^{-1} \quad (2.12a)$$

Esta expresión se reduce a la ecuación (2.4b) para  $b = 1$ , mientras que para  $b$  distinto de uno, puede usarse la siguiente aproximación<sup>(13)</sup>:

$$S = (\beta E/kT_m^2) \exp(E/kT_m) [(b-1)(2kT_m/E) + 1]^{-1} \quad (2.12b)$$

La ecuación (2.12b) se obtiene reemplazando la integral de la ecuación (2.12a) por los dos primeros términos de la serie asintótica. Si no se conoce  $b$ , pero  $E$  es conocido,  $S$  todavía puede obtenerse de la ecuación (2.12b) suponiendo  $b = 1$  o  $b = 1.5$ . De hecho, la ecuación (2.12b) da casi el mismo valor para cualquier valor de  $b$ , pues  $2kT_m \ll E$  en la mayoría de los casos.

La ecuación (2.12) se reduce al caso de segundo orden para  $b = 2$ . Obviamente esto no es válido para  $b = 1$  pero se reduce al caso de primer orden a medida que  $b$  se aproxima a 1. En general, debería notarse que la forma y la temperatura del pico de las curvas *glow* de primer orden son independientes de la concentración inicial de la carga atrapada mientras que, en contraste, tanto la forma como la temperatura de los picos *glow* de segundo orden pueden variar apreciablemente con la carga inicial atrapada, es decir, con la dosis. En general, los picos *glow* de segundo orden se mueven a temperaturas más altas a medida que la concentración inicial de carga,  $n_0$ , aumenta. Sin embargo, no es posible probar que un pico de segundo orden tenga las propiedades de respuesta de dosis lineal y que la forma del pico es casi independiente de la dosis (especialmente sobre rangos limitados de dosis) tal que el uso de las propiedades

anteriores como prueba para la cinética de primer orden deberían ser aplicadas con cautela. De hecho, sin mediciones sofisticadas que involucren muchas mediciones físicas, puede ser imposible identificar inequívocamente el orden de la cinética de los picos *glow* individuales.

### 2.3. El modelo de orden mixto

La mayoría de los materiales TLD posee curvas *glow* complejas con muchos picos *glow*. La suposición  $m = n$  usada para obtener las ecuaciones (2.9), (2.10), (2.11) y (2.12) es altamente improbable. Obviamente hay trampas pobladas más profundas las cuales se activan sólo a elevadas temperaturas. Además, puede haber trampas “desconectadas térmicamente”, tal que se debería escribir  $m = n + n_c + c$  donde  $c$  es una constante positiva o negativa. Si  $n_c = 0$ , se obtiene de la ecuación (2.8) para  $A = B$

$$I = -dn/dt = [S/(c + N)]n(n + c)\exp(-E/kT) \quad (2.13)$$

mientras que para  $Am \ll B(N-n)$  (alto reatrapamiento) y  $n \ll N$ ,

$$I = -dn/dt = (SA/BN)n(n + c)\exp(-E/kT) \quad (2.14)$$

Esta relación<sup>(14)</sup> se reduce a primer orden cuando  $c \gg n$  y a segundo orden cuando  $c \ll n$ . La solución general para una tasa de calentamiento constante puede escribirse como:

$$I(T) = \frac{S'c^2d \exp\left[\left(S'c/\beta\right)\int_{T_0}^T \exp(-E/kT')dT'\right] \exp(-E/kT)}{\left\{\exp\left[\left(S'c/\beta\right)\int_{T_0}^T \exp(-E/kT')dT'\right] - d\right\}^2} \quad (2.15)$$

donde  $S' = SA/BN$  y  $d = n_0/(n_0+c)$ .

### 2.4. Modelos que involucran una distribución continua de los estados trampa.

Claramente, la forma de la curva *glow* TL y sus picos individuales puede llegar a ser muy difícil (casi imposible) de parametrizar de una manera única si se intenta incluir toda la complejidad física que conllevan los mecanismos TL. Se puede introducir mayor complejidad si se permite que tanto electrones como huecos sean liberados térmicamente en el mismo rango de temperatura<sup>(15; 16)</sup> o, si se permite una distribución continua de energías de activación, donde la distribución puede ser rectangular, exponencial, gaussiana, etc<sup>(17)</sup>. Por ejemplo<sup>(18)</sup>, si se supone una cinética de primer

orden y una distribución continua de los estados trampa uniformemente distribuida sobre un rango finito de energía  $E = E_2 - E_1$ , la intensidad TL puede escribirse como:

$$I(T) = (n_0 S / \Delta E) \int_{E_1}^{E_2} \exp(-E/kT) \exp\left[(-S/\beta) \int_{T_0}^T \exp(-E/kT') dT'\right] dE \quad (2.16)$$

donde todos los parámetros tienen su significado usual. Usando la expansión en series asintóticas, esto puede aproximarse como

$$I(T) = \int_{E_1}^{E_2} \exp\left\{-E/kT - (SkT^2/\beta E) \exp(-E/kT) [1 - 2kT/E + (6k^2T^2/E^2) \dots]\right\} dE \quad (2.17)$$

El primer término entre paréntesis es mucho mayor que el segundo término. Además, la principal variación del segundo término es a través del factor exponencial  $\exp(-E/kT)$ . Así, una aproximación en la cual el segundo término simplemente se escribe como  $(SkT^2/\beta E_0) \exp(-E/kT) (1 - 2kT/E_0 + \dots)$  no se espera que afecte los resultados significativamente. Con este cambio, la integración es casi directa resultando en

$$I(T) = (kT/\gamma \Delta E) \left\{ \exp[-\gamma \exp(-E_2/kT)] - \exp[-\gamma \exp(-E_1/kT)] \right\} \quad (2.18)$$

donde

$$\gamma = (SkT^2/\beta E_0) (1 - 2kT/E_0 + 6k^2T^2/E_0^2 \dots) \quad (2.19)$$

El resultado principal de esta distribución particular de energías de activación es un ensanchamiento del pico *glow*, particularmente aquel de mayor temperatura media. Así, la ocurrencia de un continuo de estados trampa podría resultar en un pico en el cual la presencia de reatrapamiento esté enmascarada por las características relacionadas a la distribución continua de energías.

Finalmente, y para completar este resumen de la teoría de la curva *glow*, cabe mencionar un formalismo generalizado<sup>(19)</sup> en el cual se permite que el orden de la cinética varíe a medida que las trampas son depletadas. Por ejemplo, el reatrapamiento puede ser bajo en la región de crecimiento inicial y mucho mayor a altas temperaturas debido a la depleción de las trampas.

## 2.5. Comentarios finales sobre la cinética TL.

En los últimos años se han reportado una variedad de resultados anómalos con los parámetros cinéticos que son, casi ciertamente, irreales físicamente. Estos se enumeran a continuación<sup>(11)</sup>:

- El factor pre-exponencial,  $S$  (para primer orden), y  $S' = S n_c / N$  (para segundo orden), es demasiado grande o demasiado pequeño para ser físicamente razonable (por lo menos en el marco de los modelos descritos aquí).
- Grandes valores inusuales de  $E$  que son a menudo acompañados por valores excepcionalmente grandes de  $S$ .
- En muchos sistemas los parámetros cinéticos dependen de la dosis, y algunas veces de una manera altamente errática, lo cual dificulta, y a veces imposibilita, la aproximación tanto con cinética de primer como de segundo orden.

## **CAPÍTULO 3**

### **“ASPECTOS MATEMÁTICOS DE LA DECONVOLUCIÓN COMPUTARIZADA DE LA CURVA GLOW”**

---

## Aspectos matemáticos de la deconvolución computarizada de la curva glow

---

### 3.1. Las integrales en la teoría TL

La integral  $\int_{T_0}^T e^{\frac{-E}{kT'}} dT'$ , donde  $E$  (energía de activación [eV]),  $T$  (temperatura

absoluta [K],  $k$  (constante de Boltzmann,  $8,269 \cdot 10^{-5}$  [eV/K]), aparece en todas las expresiones que describen la intensidad termoluminiscente en función de la temperatura cuando el factor pre-exponencial se supone independiente de la temperatura y cuando se emplea una tasa de calentamiento constante. Pero lamentablemente esta integral no puede resolverse analíticamente. Debe ser evaluada muchas veces para cada pico *glow* y para cada iteración en los procedimientos de mínimos cuadrados usados para aproximar la curva *glow*, lo cual involucra tiempos de cálculo relativamente largos. Además el grado de precisión requerido en la evaluación de la integral es desconocido y variará de aplicación en aplicación. El error involucrado en el cálculo es exacerbado debido al comportamiento rápidamente variable de la función exponencial de la temperatura como se muestra en la figura 3.1.

Existen varios métodos conocidos para evaluar esta integral, entre ellos, la aproximación por series asintóticas<sup>(20)</sup>:

$$F(T, E) = \int_0^T \exp(-E/kT') dT' \quad (3.1)$$

$$F(T, E) = (kT^2/E) \exp(-E/kT) \sum_{i=0}^{\infty} (kT/E)^i (-1)^i i! \quad (3.2)$$

De esto, inmediatamente se ve que:

$$\int_{T_0}^T \exp(-E/kT') dT' = F(T, E) - F(T_0, E) \quad (3.3)$$

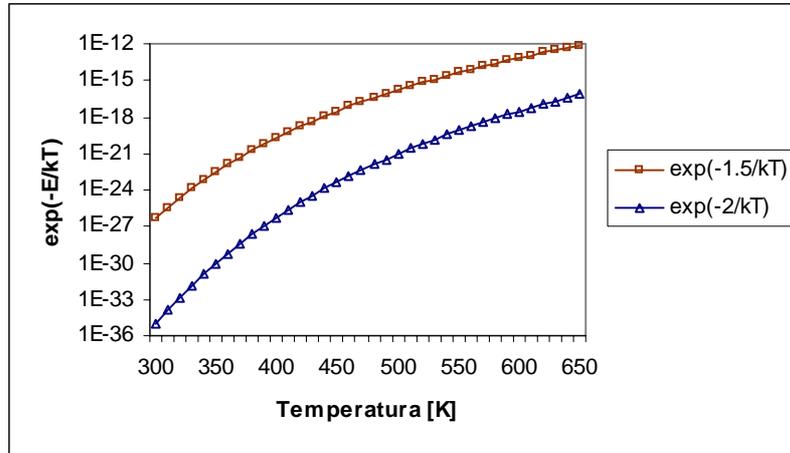
La integral de la ecuación (3.1) puede ser calculada de varias formas. Un método<sup>(21)</sup> es escribir:

$$F(T, E) = T \cdot \exp(-E/kT) + (E/k) E_i(-E/kT) \quad (3.4)$$

donde

$$-E_i(-u) = \int_0^T (e^{-u}/u) du \quad (3.5)$$

es la integral exponencial conocida.



**Figura 3.1.** Variación de la función  $\exp(-E/kT)$  con la temperatura absoluta

El uso de tablas para la integral exponencial es una posibilidad; sin embargo, no se considera muy exacto y usualmente se prefiere el empleo de un procedimiento numérico que calcule el valor de  $F$  para  $E$  y  $T$  dados. Si bien son útiles varios algoritmos, debido a que en la deconvolución de la curva *glow* de materiales TLD comunes se lidia con valores de  $E/kT$  del orden de 10 o mayores, un método satisfactorio usado a menudo es el de las series asintóticas. El uso del primer término en la serie para este propósito fue expresado en la ecuación (3.2)<sup>(20)</sup>:

$$F(T, E) = T \cdot \exp(-E/kT) \sum_{n=1}^{\infty} (kT/E)^n (-1)^{n-1} n! \quad (3.6)$$

el cual puede obtenerse integrando por partes la ecuación (3.3). La serie de la ecuación (3.6) es un ejemplo de un grupo de series llamadas asintóticas. Este tipo de series no converge en el sentido usual como se puede ver dividiendo  $a_{n+1}$  por  $a_n$ .

$$|a_{n+1}/a_n| = (kT/E)(n+1) \quad (3.7)$$

Para un dado valor de  $kT/E$  y  $n$  suficientemente grande, esta relación (en valor absoluto), excede la unidad, lo cual prueba la divergencia de la serie. El error<sup>(22)</sup>, al evaluar la integral de la ecuación (3.3) tomando términos hasta  $a_n$ , no excede el término  $a_{n+1}$ . En la cinética termoluminiscente, con  $E/kT > 10$ , los primeros términos en la serie disminuyen en valor absoluto. La exactitud mejora al tomar más términos en este rango de términos decrecientes. En la literatura se sugiere que la mejor estrategia consiste en tomar todos los términos por debajo del más pequeño excepto uno y así el posible error está limitado

al valor del término más pequeño. Esto ocurre cuando  $|a_{n+1}/a_n|$  es aproximadamente igual a la unidad. De la ecuación (3.7) es obvio que el número de términos a tomar para la mejor exactitud es

$$N = [E/kT] \quad (3.8)$$

donde los corchetes indican la parte entera.

El posible error involucrado,  $R_N$ , está dado por el término  $a_{N+1}$ :

$$|R_N| = |a_{N+1}| = (kT/E)^N (N+1)! \quad (3.9)$$

Sustituyendo de la ecuación (3.8) y usando la fórmula de Stirling para  $(N+1)!$ , se obtiene el error relativo<sup>(22)</sup>:

$$|R_N/F(T, E)| = [2(E/kT)^3]^{0.5} \exp(-E/kT) \quad (3.10)$$

Hay varios métodos más simples de aproximación a  $F(T, E)$ <sup>(13)</sup>. Por ejemplo,

$$F(T, E) = [kT^2/(E + 2kT)] \exp(-E/kT) \quad (3.11)$$

o, una mejor aproximación,

$$F(T, E) = [kT^2/(1 + 4kT/E)^{1/2}] \exp(-E/kT) \quad (3.12)$$

Usando solamente el primer término en la serie asintótica de la ecuación (3.6) resulta en una expresión simplificada para  $I(T)$  dada por

$$I(T) = S n_0 \exp[-E/kT - (S/\beta)(kT^2/E) \exp(-E/kT)] \quad (3.13)$$

conocida como la aproximación de Podgorsak-Moran-Cameron (PMC)<sup>(23)</sup>, la cual se utiliza en este trabajo. La aproximación PMC puede resultar en errores de aproximadamente 10% o mayores en la evaluación de  $n_0$ , sin embargo, la velocidad de cálculo es mucho mayor. Para aplicaciones dosimétricas que involucren análisis en tiempo real de cientos o miles de dosímetros, la aproximación PMC puede, en consecuencia, ser la elección preferida<sup>(24)</sup>. Además, en la mayoría de las aplicaciones dosimétricas el error relativo será esencialmente despreciable debido a que la calibración también empleará la aproximación PMC. El uso de dos términos en la serie asintótica debería reducir el error absoluto asociado a aproximadamente el 1%.

La aproximación PMC<sup>(23)</sup> a la forma de los picos *glow* con cinética de primer orden evita la integración de la función exponencial:

$$I(T) = I_m \exp\{1 + [(T - T_m)(E/kT^2)] - \exp[(T - T_m)(E/kT^2)]\} \quad (3.14)$$

donde  $I_m$  es la intensidad máxima del pico y  $T_m$  es la temperatura a la cual ocurre la intensidad máxima. Esta aproximación se basa en los picos *glow* angostos, es decir, que

el ancho del pico a la mitad de la intensidad del pico,  $\Delta T$ , es mucho menor que la temperatura a la intensidad máxima del pico ( $\Delta T \ll T_m$ ).

### 3.2. Aproximación a la curva *glow*

Debido a que la curva *glow* es una función no lineal de los parámetros  $E$ ,  $S$  y  $n_0$  para cada pico, (o alternativamente,  $T_{max}$ ,  $I_{max}$  y el ancho del pico o cualquier otro parámetro de forma) debe usarse un procedimiento iterativo para evaluar las mejores aproximaciones a estos parámetros. Para una curva *glow* con  $q$  picos *glow*, el número de parámetros desconocidos será  $3q + 3$  donde los tres parámetros adicionales corresponden al fiteo de la señal de fondo. En muchas rutinas CGCD el fondo es evaluado usando una expresión de la forma  $a \cdot \exp(T/b) + c$ . La sustracción adecuada del fondo es crucial para la reducción de la dosis mínima detectable con CGCD. En la dosimetría de rutina, algunos de estos parámetros desconocidos pueden, de hecho, ser conocidos gracias a procedimientos a priori de fiteo, pues, para una buena aproximación, se puede esperar razonablemente que  $E$  y  $S$  no varíen significativamente de día a día. Debe definirse una función de mérito Chi-cuadrado y los mejores parámetros se determinan a partir de su minimización. La minimización Chi-cuadrado comienza con valores iniciales para los parámetros desconocidos, se adopta un procedimiento matemático que mejore la solución trivial (reduciendo el Chi-cuadrado). El procedimiento se repite hasta que el Chi-cuadrado deje de (o efectivamente se detenga) disminuir. En la literatura hay varias técnicas disponibles para la minimización no lineal Chi-cuadrado. En este trabajo se utiliza el método de Levenberg-Marquardt, el cual se describe en la figura 3.2.

El método de Marquardt (basado en una sugerencia anterior de Levenberg)<sup>(25)</sup> varía suavemente entre los extremos del método de linealización de la función aproximación y el método de descenso más empinado. El último método se utiliza desde el mínimo, y el primero a medida que se aproxima al mínimo. El método Marquardt combina así las mejores características de los métodos.

```

begin
   $k := 0; \quad v := 2; \quad x := x_0$ 
   $A := \mathbf{J}(x)^T \mathbf{J}(x); \quad g := \mathbf{J}(x)^T \mathbf{f}(x)$ 
   $found := (\|g\|_\infty \leq \varepsilon_1); \quad \mu := \tau * \max\{a_{ii}\}$ 
  while (not  $found$ ) and ( $k < k_{max}$ )
     $k := k + 1; \quad \text{Solve } (\mathbf{A} + \mu \mathbf{I}) \mathbf{h}_{lm} = -g$ 
    if  $\|\mathbf{h}_{lm}\| \leq \varepsilon_2(\|x\| + \varepsilon_2)$ 
       $found := \text{true}$ 
    else
       $x_{new} := x + \mathbf{h}_{lm}$ 
       $\delta := (F(x) - F(x_{new})) / (L(0) - L(\mathbf{h}_{lm}))$ 
      if  $\delta > 0$ 
         $x := x_{new}$ 
         $A := \mathbf{J}(x)^T \mathbf{J}(x); \quad g := \mathbf{J}(x)^T \mathbf{f}(x)$ 
         $found := (\|g\|_\infty \leq \varepsilon_1)$ 
         $\mu := \mu * \max\{\frac{1}{3}, 1 - (2\delta - 1)^3\}; \quad v := 2$ 
      else
         $\mu := \mu * v; \quad v := 2 * v$ 
    end
end

```

**Figura 3.2.** Algoritmo Levenberg-Marquardt<sup>(25)</sup>.  
(Consultar nomenclatura en la referencia citada)

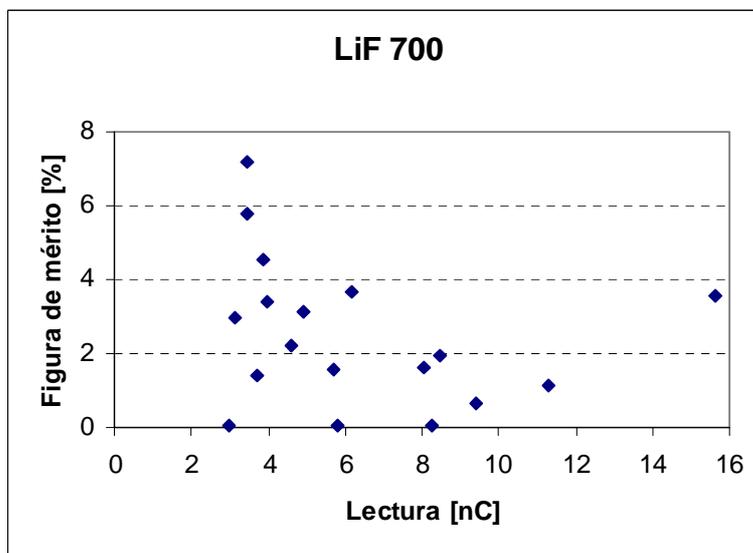
El método Levenberg-Marquardt es rápido y exacto comparado con otros métodos de minimización no lineales. Otra pregunta importante es la condición a cumplirse para que se detenga el proceso de convergencia. Si bien hay varias respuestas para esta pregunta, en el presente trabajo se adopta una figura de mérito capaz de medir cuán buena es la aproximación. Esta figura de mérito se define como<sup>(26; 27)</sup>:

$$FOM = \sum_{j_i}^{j_f} \frac{100|y_j - y(x_j)|}{A} \quad (3.15)$$

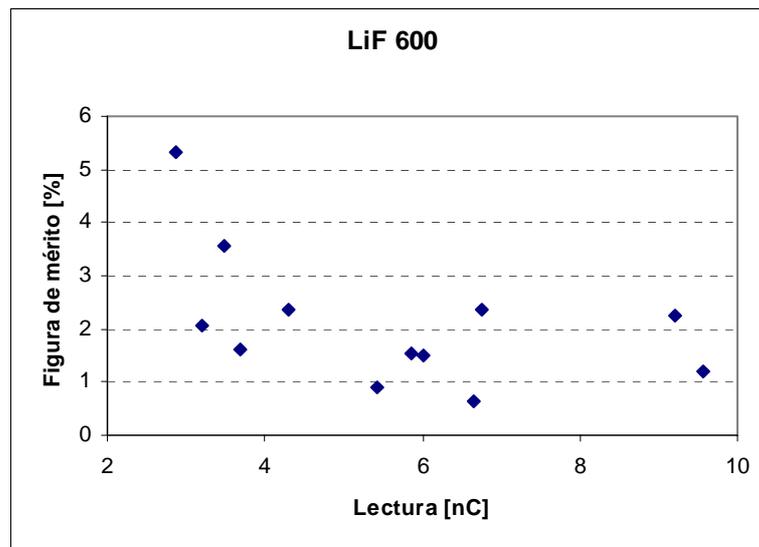
donde  $FOM$  = Figura de Mérito (%),  $j_i$  = primer canal en la región de interés;  $j_f$  = último canal en la región de interés;  $y_j$  = contenido de información del canal  $j$ ;  $y(x_j)$  = valor de la función de aproximación en el canal  $j$ ;  $A$  = integral de la curva  $glow$  aproximada en la región de interés.

Esta FOM es una expresión más conveniente que el Chi-cuadrado porque la desviación estándar de la intensidad TL en cada canal, usada en la expresión para el Chi-cuadrado, usualmente no se conoce en aplicaciones TLD. Esto requiere que la

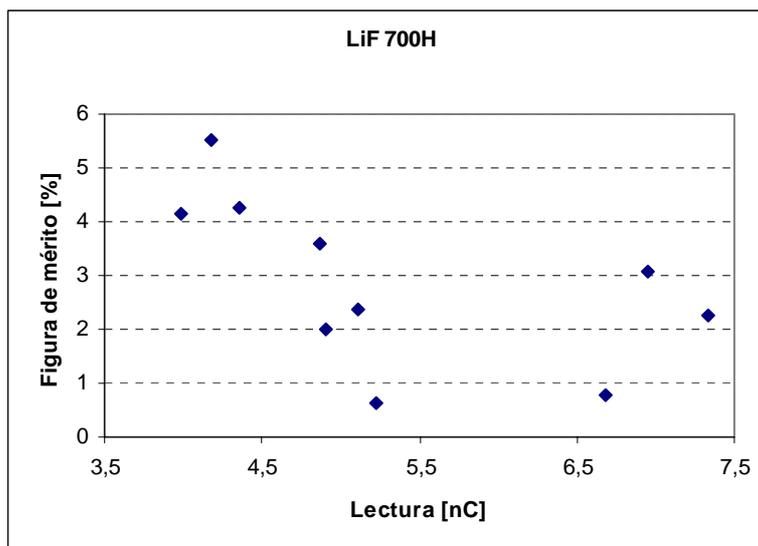
desviación estándar sea igual a la unidad para todos los canales lo que significa que el valor del Chi-cuadrado variará con la dosis (intensidad TL) y su valor en general no estará cerca de la unidad para una aproximación satisfactoria. Curvas *glow* con valores de FOM por encima del 5% están sujetas a investigación para determinar las razones de un fiteo tan pobre. Por supuesto, en una curva *glow* con muchos picos *glow*, la cancelación de errores es mucho más probable que en una curva *glow* con, por ejemplo, un pico. Por lo tanto, una FOM de 5% en una curva *glow* de varios picos podría considerarse menos satisfactoria que una FOM de 5% en el caso de una curva *glow* de un solo pico.



**Figura 3.3.** Figura de mérito (%) en función de la lectura (dosis) correspondiente a un servicio de radiología.



**Figura 3.4.** Figura de mérito (%) en función de la lectura (dosis) correspondiente a un período de lectura del RA6.



**Figura 3.5 .** Figura de mérito (%) en función de la lectura (dosis) correspondiente a un período de lectura de dosímetros ambientales del CAB.

En todos los casos se observa que, a medida que aumenta la dosis depositada en el material TL, disminuye la figura de mérito. Esto se debe a que en situaciones de bajas dosis la relación señal-ruido es menor debido a la incorporación de señales espurias y a la propia radiación de fondo, cuestiones todas que dificultan la deconvolución.

## **CAPÍTULO 4**

### **“DECONVOLUCIÓN DE LA CURVA GLOW DE VARIOS MATERIALES TLD”**

---

## Deconvolución de la curva glow de varios materiales TLD

---

### 4.1. Introducción.

En este capítulo se resumen los resultados de la deconvolución computarizada de la curva *glow* (CGCD) aplicada a algunos materiales TLD sin ahondar demasiado en las complicaciones de los resultados de la deconvolución para varias aplicaciones dosimétricas. En realidad, las aplicaciones más importantes y probadas de la CGCD a los TLD (precisión a bajas dosis, mejora de la dosis mínima detectable) han surgido principalmente de la correcta sustracción de la señal de fondo debido a la CGCD más que de la separación de los picos *glow*. No obstante, otras importantes aplicaciones dosimétricas como el control de calidad, estimación del momento de irradiación, procedimientos óptimos de recocido y dosimetría de campos mixtos sí dependen de la deconvolución de la curva *glow* en sus picos *glow* componentes y este aspecto de CGCD es también de importancia considerable.

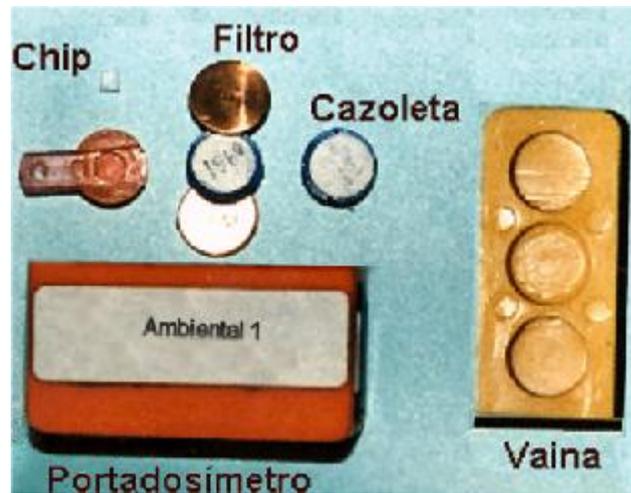
### 4.2. Materiales y métodos.

Los materiales utilizados en este trabajo fueron LiF:Mn,Ti (TLD) en diferentes versiones: LiF-600 y LiF-700 para dosimetría personal, cuyas características se describen en el capítulo 1 y LiF:Mg,Cu,P (LiF-700H) para dosimetría ambiental. Las características TL para todos los casos incluyen alta sensibilidad, respuesta en energía de fotones casi plana, *fading* insignificante. Las dimensiones de los fósforos empleados son 1 mm de espesor y 9 mm<sup>2</sup> de superficie. Los fósforos fueron recocidos de la siguiente manera:

- LiF-600 y LiF-700: 1 hora a 400°C y 24 horas a 75°C. El pasaje de una temperatura a otra es inmediato y al cabo de las 24 horas se dejan enfriar en una caja de Petri a temperatura ambiente en un armario a oscuras.
- LiF-700H: 15 minutos a 240°C y enfriados a temperatura ambiente a oscuras.

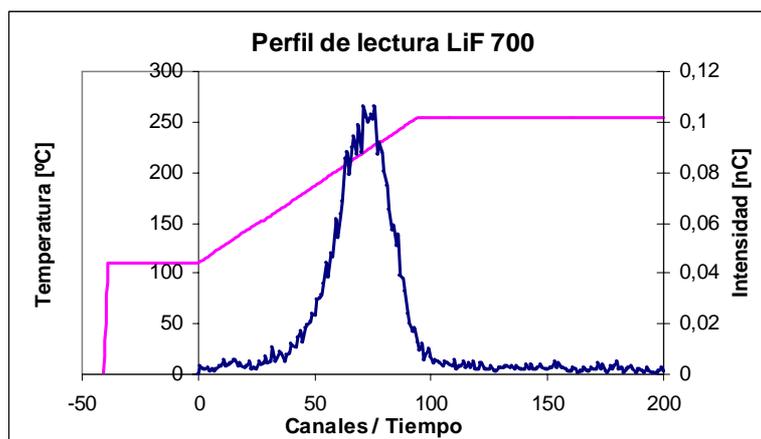
El precalentamiento de los LiF-600 y LiF-700 en el lector elimina los picos *glow* 1 y 2, eliminando, fundamentalmente, la parte más susceptible a *fading*; reduce el ruido presente en la señal y concentra toda la información dosimétrica en el pico 5 (radiación gamma) y en el pico 8 (neutrones).

Los ciclos de lectura de los chips irradiados, realizados con un equipo Harshaw TLD 3500 en una atmósfera de nitrógeno de flujo constante (2 l/min), se muestran en las figuras 4.1, 4.2 y 4.3.

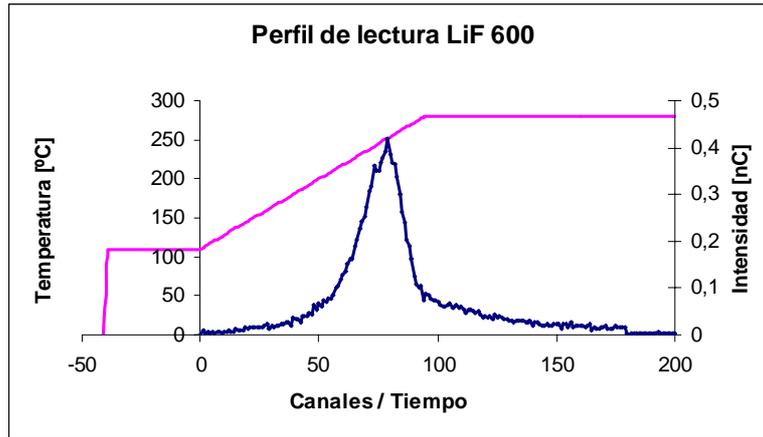


**Figura 4.1.** Imagen del chip TLD y de las partes constituyentes del dosímetro.

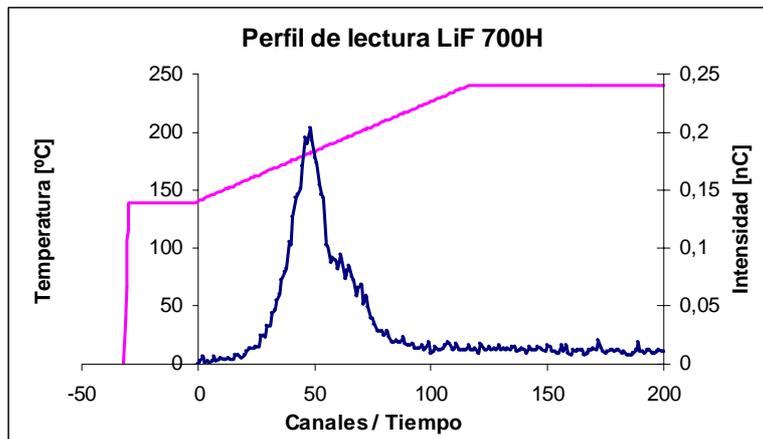
La deconvolución de las curvas *glow* se explica en detalle en el próximo apartado. Aquí se puede adelantar que la misma se hizo siguiendo el modelo de cinética de primer orden. Inicialmente, se determinó la línea central del pico *glow* principal; fue recortado para que se ajustara a la intensidad máxima de los picos superpuestos. A continuación, sustrayendo la intensidad del pico principal de la intensidad combinada de los picos adyacentes, o sustrayendo los picos adyacentes del pico principal, se determinó la forma del pico principal. Este procedimiento se repitió para cada uno de los picos *glow*.



**Figura 4.1.** Perfil de lectura de los dosímetros LiF 700. La temperatura de la plancha de acero inoxidable sube desde temperatura ambiente hasta 110°C en forma casi instantánea. Permanece en 110°C durante 16 segundos, seguido de una tasa de calentamiento constante y lineal (12°C/seg.), hasta alcanzar los 255°C, donde se mantiene durante 23,3 segundos. Luego desciende hasta 50°C en forma exponencial.



**Figura 4.2.** Perfil de lectura de los dosímetros LiF 600. La temperatura de la plancha de acero inoxidable sube desde temperatura ambiente hasta 110°C en forma casi instantánea. Permanece en 110°C durante 16 segundos, seguido de una tasa de calentamiento constante y lineal (12°C/seg.), hasta alcanzar los 280°C, donde se mantiene durante 23,3 segundos. Luego desciende hasta 50°C en forma exponencial.



**Figura 4.3.** Perfil de lectura de los dosímetros LiF 700H. La temperatura de la plancha de acero inoxidable sube desde temperatura ambiente hasta 140°C en forma casi instantánea. Permanece en 140°C durante 10 segundos, seguido de una tasa de calentamiento constante y lineal (20°C/seg.), hasta alcanzar los 240°C, donde se mantiene durante 20 segundos. Luego desciende hasta 50°C en forma exponencial.

### 4.3. Deconvolución de la curva *glow*.

Los algoritmos de aproximación a la curva *glow*, como el ajuste con una función matemática a la señal de fondo y la detección del pico principal, son más sensibles a curvas *glow* ruidosas y señales de muchas puntas que aparecen a valores de dosis inferiores a 10 mSv.

Un algoritmo de suavizado reduce la señal de ruido, pero no las puntas. Con el uso de los procedimientos de recocido y equipamiento descritos en el apartado anterior, se observa que las puntas aparecen en un alto porcentaje de las curvas *glow*. Por un lado, es evidente que ocasionan una mayor alteración de la curva *glow* experimental a

dosis menores a 1 mSv. Por otro lado, pueden conducir también a mayores errores en dosis más elevadas, si aparecen en los primeros o en los últimos 30 canales donde el algoritmo de suavizado es muy sensible. Estas regiones también se utilizaron para determinar los parámetros para la evaluación de la señal de fondo como se describe más abajo. Por lo tanto, las puntas pueden dar lugar a una severa sobreestimación de la señal de fondo aún con valores de dosis mayores a 1 mSv y tienen que ser removidas de la señal por un suavizado preciso de la curva *glow*. El suavizado y remoción de puntas consiste en los siguientes pasos:

1. Se aplica un procedimiento de suavizado al conjunto de datos medidos. El algoritmo empleado es el filtro estándar de Savitzky-Golay<sup>(28)</sup> con intervalos asimétricos en los bordes.
2. Se calcula el coeficiente empírico de variación entre los datos suavizados y los datos medidos.
3. Se remueven todos los puntos de datos fuera de un intervalo 3 veces el coeficiente empírico de variación y se reemplazan por los valores suavizados.
4. Se suaviza nuevamente la curva corregida.

Aplicando este procedimiento, todas las puntas significativas son removidas del conjunto de datos en consideración. El conjunto de datos suavizados se prepara ahora para los procedimientos de sustracción de la señal de fondo y de aproximación de la curva *glow*.

La función de aproximación aplicada a la señal de fondo está compuesta por dos partes independientes:

$$U(T_i) = h_1 + h_2 \exp[a(T_i - T_0)] \quad (4.1)$$

Aquí  $h_1$  es una constante de offset para la señal equivalente oscura del fototubo y la función exponencial describe el aumento típico de la señal a temperaturas elevadas. Los parámetros de forma  $a$  y  $T_0$  se suponen constantes para mejorar la robustez de la evaluación de la señal de fondo. Estos valores son estimados a partir de la curva *glow* estándar. Para los procedimientos y sistemas de lectura descritos, valores adecuados son  $a = 0.03 \text{ K}^{-1}$ ,  $0.025 \text{ K}^{-1}$  y  $0.1 \text{ K}^{-1}$  y  $T_0 = 580 \text{ K}$ ,  $555 \text{ K}$  y  $513 \text{ K}$  para LiF-700, LiF-600 y LiF-700H respectivamente. Las constantes  $h_1$  y  $h_2$  se determinan individualmente como los valores medios de los puntos de datos suavizados dentro de dos regiones de interés en los bordes de la señal de la curva *glow*. Esto es, entre los canales 1 y 10 para  $h_1$  y entre 175 y 190, para  $h_2$ . Luego se resta el fondo de la señal suavizada. El conjunto de

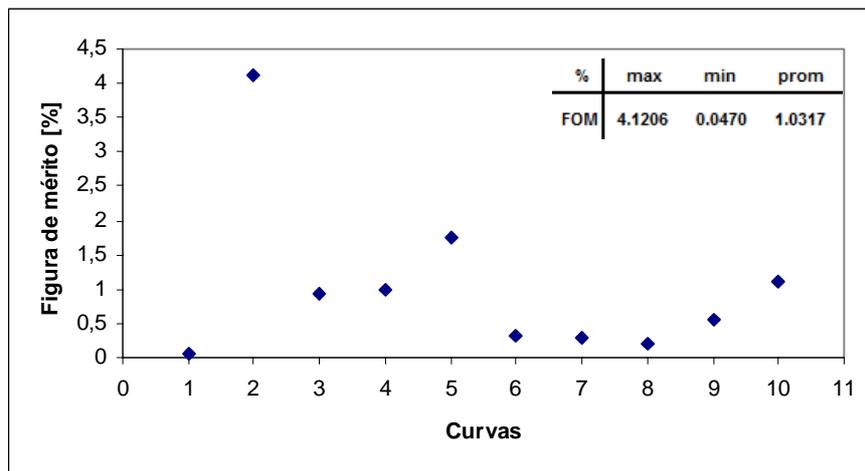
datos suavizados y corregidos es la base para la rutina de deconvolución de la curva *glow*.

Una curva *glow* TLD típica consiste generalmente de tres o cuatro picos individuales. Para la aproximación de la curva *glow*, se usó la solución analítica del modelo de cinética de primer orden de Randall y Wilkins<sup>(1)</sup> representado por la siguiente ecuación:

$$I(T_i) = \sum_{n=1}^{10} \left( I_{\max,n} \exp \left\{ 1 + \frac{E_n}{k} \left( \frac{1}{T_{\max,n}} - \frac{1}{T_i} \right) - \exp \left[ \frac{E_n}{k} \left( \frac{1}{T_{\max,n}} - \frac{1}{T_i} \right) \right] \right\} \right) \quad (4.2)$$

La curva *glow*  $I(T_i)$  es la suma de los  $n$  picos TL individuales (el algoritmo desarrollado permite identificar hasta 10 picos individuales) teóricos descritos por su intensidad máxima  $I_{\max}$  a la temperatura  $T_{\max}$  y su energía de activación  $E$ . El uso de la ecuación (4.2) para calcular  $n$  picos y evaluar las áreas de la integral proporciona una buena aproximación para la solución numérica del modelo de Randall y Wilkins para una cinética de primer orden y una tasa de calentamiento lineal.

El algoritmo fue desarrollado en Matlab 6 en una plataforma Windows XP con un procesador Pentium(R) D CPU 2.66 GHz. Para verificar el algoritmo se generaron diez curvas *glow* de cuatro picos cada una. En todos los casos se obtuvieron valores de FOM por debajo del 5%, lo cual puede considerarse aceptable según la bibliografía consultada<sup>(24)</sup>. A continuación se resumen los resultados obtenidos:

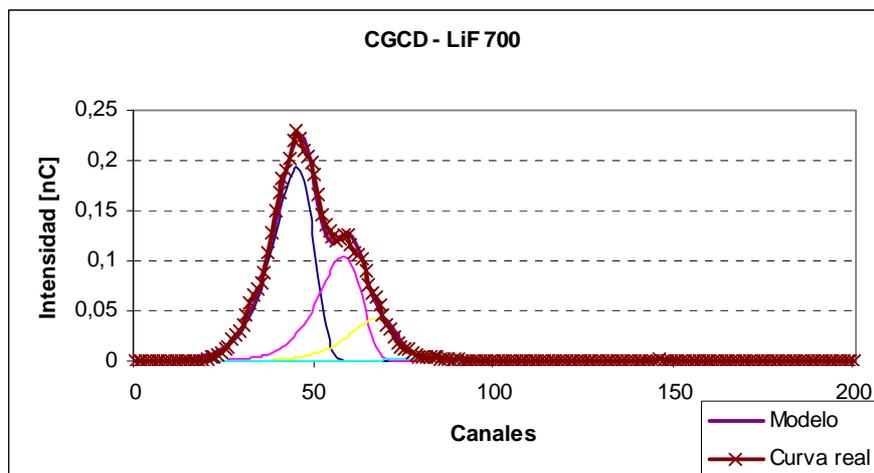


**Figura 4.4.** Se representa la FOM obtenida para cada curva generada artificialmente. En el margen superior derecho se muestran los valores máximo, mínimo y promedio.

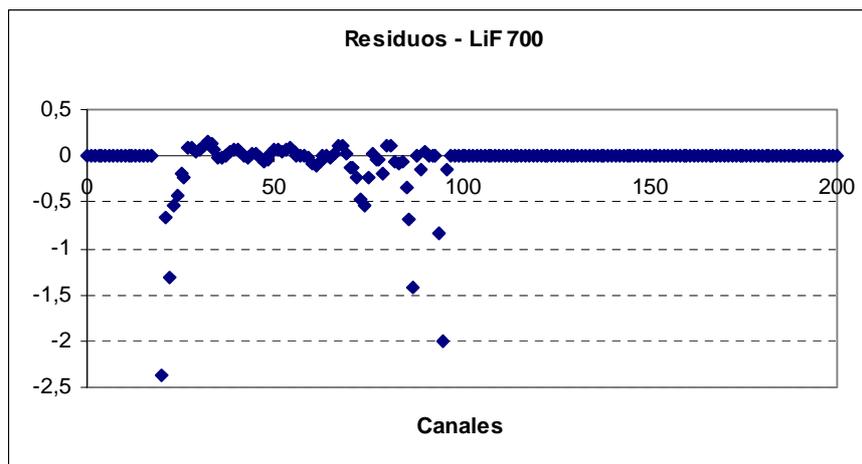
**Tabla 4.1.** Errores promedio en la determinación de las intensidades, temperaturas y energías de cada pico *glow*.

Pico	I [%]	T [%]	E [%]
1	10,82	0,09	-0,16
2	-26,89	0,13	-0,12
3	-9,59	1,37	2,52
4	-29,73	-1,24	-0,80

En las próximas figuras se muestran ejemplos de los resultados obtenidos para cada tipo de material TL utilizado en el Grupo de Protección Radiológica del CAB para dosimetría personal y ambiental.



**Figura 4.5.** Deconvolución computarizada de la curva *glow* de LiF 700. Se observan la curva real, el modelo al que se llegó con el algoritmo de aproximación, y los picos *glow* individuales.



**Figura 4.6.** Residuos (diferencia entre las intensidades de las curvas *glow* experimental y calculada dividido por la intensidad de la curva *glow* experimental) de la figura 4.5.

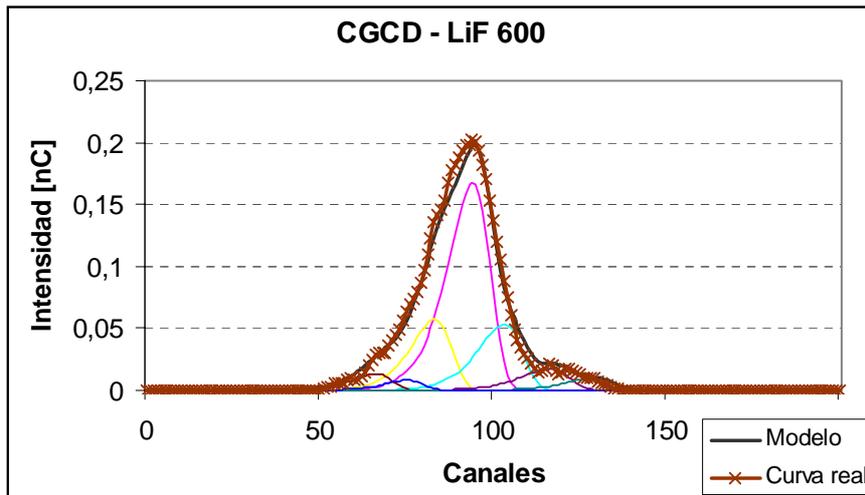


Figura 4.7. Deconvolución computarizada de la curva *glow* de LiF 600. Se observan la curva real, el modelo al que se llegó con el algoritmo de aproximación, y los picos *glow* individuales.

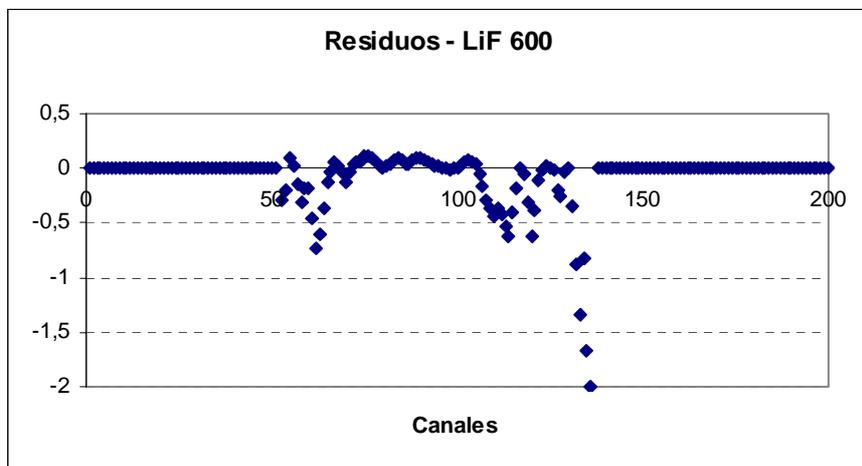


Figura 4.8. Residuos (diferencia entre las intensidades de las curvas *glow* experimental y calculada dividido por la intensidad de la curva *glow* experimental) de la figura 4.7.

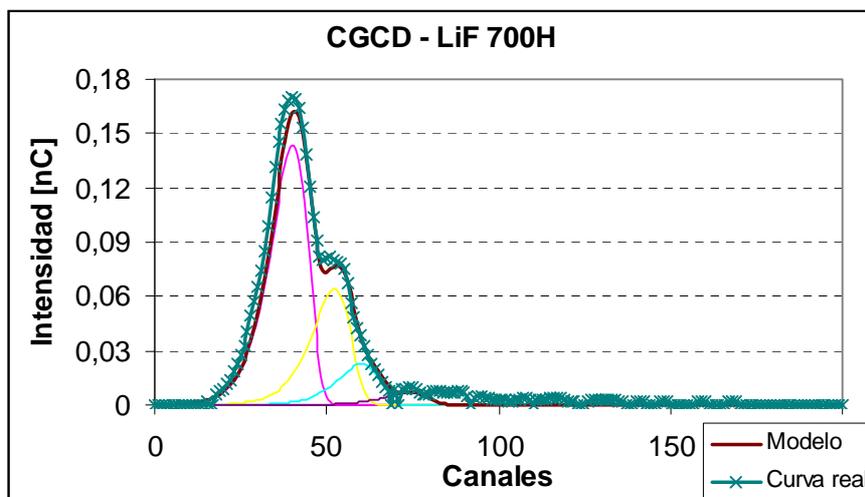
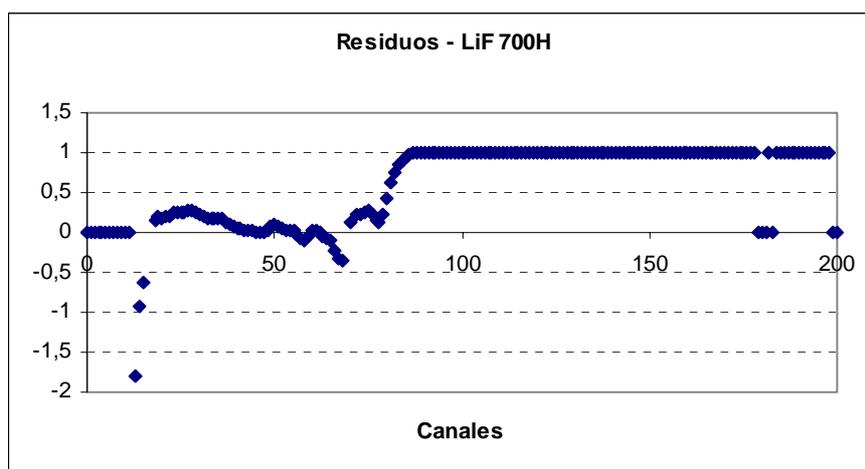


Figura 4.9. Deconvolución computarizada de la curva *glow* de LiF 700H. Se observan la curva real, el modelo al que se llegó con el algoritmo de aproximación, y los picos *glow* individuales.



**Figura 4.10.** Residuos (diferencia entre las intensidades de las curvas *glow* experimental y calculada dividido por la intensidad de la curva *glow* experimental) de la figura 4.9.

Como se mencionó en el apartado 4.2., inicialmente se determinó la línea central del pico *glow* principal y se hizo un ajuste de la intensidad o altura del pico. A continuación, sustrayendo la intensidad del pico principal de la intensidad combinada de los picos adyacentes, se determinaron los parámetros de forma (altura, energía de activación, temperatura máxima) del pico principal aproximándolo con la función exponencial que describe la cinética de primer orden. Este procedimiento se repitió para cada uno de los picos *glow*.

Según lo expuesto en el párrafo anterior, es posible determinar de esta manera dos de los tres parámetros independientes de cada pico ( $I_{max}$ ,  $T_{max}$ ). El tercer parámetro es la energía de activación  $E$  de cada pico; el valor inicial para ella se calculó según el método de crecimiento inicial modificado<sup>(29)</sup>.

Los tres parámetros ( $I_{max}$ ,  $T_{max}$ ,  $E$ ) de cada pico forman el conjunto de valores iniciales para echar a correr el algoritmo Levenberg-Marquardt<sup>(25)</sup>, el cual se detendrá cuando alcance un valor de FOM (figura de mérito) inferior al establecido inicialmente como requisito a cumplir (generalmente menor que el 5%).

**Tabla 4.2.** Parámetros cinéticos de los picos *glow* de LiF-700 usando CGCD.

Pico <i>glow</i>	T [°C]	E [eV]
3	164,3 ± 11,3	3,59 ± 0,11
4	174,0 ± 6,1	3,54 ± 0,13
5	182,7 ± 5,5	3,69 ± 0,05
6	188,7 ± 6,2	3,59 ± 0,05
7	198,3 ± 3,6	3,67 ± 0,10

**Tabla 4.3.** Parámetros cinéticos de los picos *glow* de LiF-600 usando CGCD.

<b>Pico <i>glow</i></b>	<b>T [°C]</b>	<b>E [eV]</b>
3	166,5 ± 3,6	3,56 ± 0,05
4	171,0 ± 3,6	3,58 ± 0,07
5	179,7 ± 2,7	3,66 ± 0,01
6	186,1 ± 2,9	3,59 ± 0,05
7	197,0 ± 3,3	3,49 ± 0,02
8	211,2 ± 3,2	3,53 ± 0,12

**Tabla 4.3.** Parámetros cinéticos de los picos *glow* de LiF-700H usando CGCD.

<b>Pico <i>glow</i></b>	<b>T [°C]</b>	<b>E [eV]</b>
3	147,6 ± 7,4	3,61 ± 0,07
4	156,0 ± 3,2	3,61 ± 0,04
5	162,5 ± 1,0	3,67 ± 0,01
6	168,7 ± 0,6	3,63 ± 0,02
7	175,2 ± 2,4	3,61 ± 0,09

Las figuras 4.5, 4.7 y 4.9 muestran curvas *glow* típicas para las tres variedades de TLD utilizadas en este trabajo: TLD-700, TLD-600, TLD-700H. Se observa que los picos de baja temperatura no son muy intensos y que la mayor parte de la información útil para dosimetría se concentra en el pico 5, que era lo esperado debido al recocido y TTP (perfil tiempo-temperatura) empleados. En todos los casos se obtuvieron energías de activación consideradas elevadas (>2.0 eV). Esto podría ser consecuencia de secciones eficaces de captura activadas térmicamente debido a procesos multi-fotones<sup>(32)</sup>.

## **CAPÍTULO 5**

### **“APLICACIONES DE LA CGCD A LA DOSIMETRÍA TERMOLUMINISCENTE”**

---

## Aplicaciones de la CGCD a la dosimetría termoluminiscente

---

### 5.1. Incertidumbre a bajas dosis (< 10 mGy) y dosis mínima detectable (DMD)

Una de las desventajas más serias de los LiF:Mn,Ti es una sensibilidad TL un tanto pobre lo que impide mediciones de dosis con una incertidumbre inferior al  $\pm 10\%$  a aproximadamente 50-100  $\mu\text{Gy}$  en la mayoría de los sistemas TL. Esto se debe a que la incertidumbre general de la medición de dosis es una función, a menudo impredecible, complicada y dependiente del usuario, de muchos factores interrelacionados incluyendo la partida, su historia de irradiación y recocido, la metodología de uso y el lector TL.

#### 5.1.1. Determinación de la señal de fondo.

Con niveles de dosis del orden de unos pocos cientos de  $\mu\text{Gy}$ , la sustracción de la señal de fondo se convierte en un factor dominante en la precisión de las mediciones TLD como también en la determinación de la dosis mínima detectable (DMD). A continuación se resumen los resultados obtenidos con un análisis estándar<sup>(37)</sup> y con las herramientas proporcionadas por la CGCD.

En el análisis estándar, cada lectura para la determinación de la dosis estuvo seguida por una segunda lectura para estimar la señal de fondo. En el caso de CGCD, el fondo se determinó con la expresión indicada en la ecuación (5.1)

$$U(T_i) = h_1 + h_2 \exp[a(T_i - T_0)] \quad (5.1)$$

El significado de cada parámetro es el indicado en el capítulo 4.

#### 5.1.2. Recta de calibración y dosis mínima detectable.

Una vez estimada la señal de fondo en cada uno de los casos (análisis estándar y CGCD) como se indica en el apartado anterior, el procedimiento seguido para determinar la recta de calibración y la dosis mínima detectable es el siguiente: para LiF-600 y LiF-700, la calibración se hizo en dosis equivalente personal Hp(d), utilizando para ello 20 dosímetros distribuidos como se detalla a continuación: 10 chips se irradiaron con una fuente de  $^{137}\text{Cs}$  de 1 Curie, posicionados sobre un fantoma a 1 metro de distancia de la fuente. Cinco dosímetros recibieron una dosis de 1 mSv y los otros

cinco, 10 mSv. Los restantes 10 dosímetros se dejaron sin irradiar (ceros). La lectura se realizó de forma inmediata.

Los resultados de un caso particular, representativo de los demás, se aprecian en las tablas 5.1 y 5.2.

**Tabla 5.1.** Resumen de la calibración de LiF-700 para el análisis estándar.

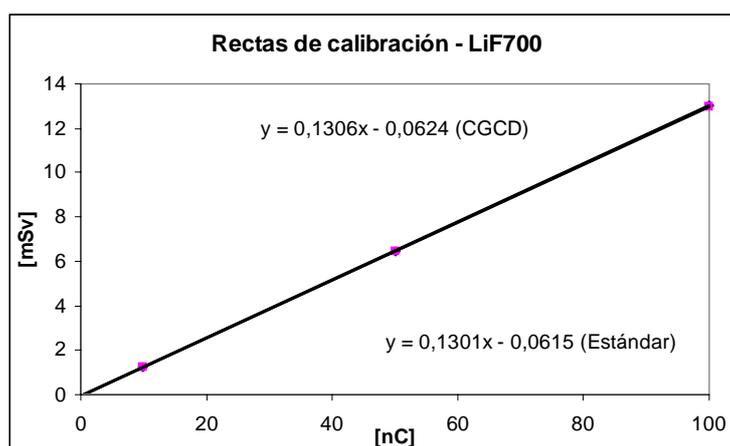
Dosis [mSv]	Promedio [nC]	Desv.Est. [nC]	Diferencia [nC]
0	1,6781	0,0850	0,0000
1	10,3684	0,8022	8,6902
10	78,9452	7,3333	77,2671

**Tabla 5.2.** Resumen de la calibración de LiF-700 para CGCD.

Dosis [mSv]	Promedio [nC]	Desv.Est. [nC]	Diferencia [nC]
0	1,8153	0,0949	0,0000
1	10,4914	0,7814	8,6761
10	78,8252	7,2748	77,0100

Con estos datos se calcula una recta de calibración en base a una estimación lineal por el método de mínimos cuadrados. Para este caso testigo, las rectas obtenidas para cada análisis se muestran en la figura 5.1.

De esta calibración de LiF-700 surge una dosis mínima detectable de 0,0332 mSv para el análisis estándar y de 0,0372 mSv para CGCD.



**Figura 5.1.** Rectas de calibración para los TLD LiF-700 obtenidas con el análisis estándar y con CGCD.

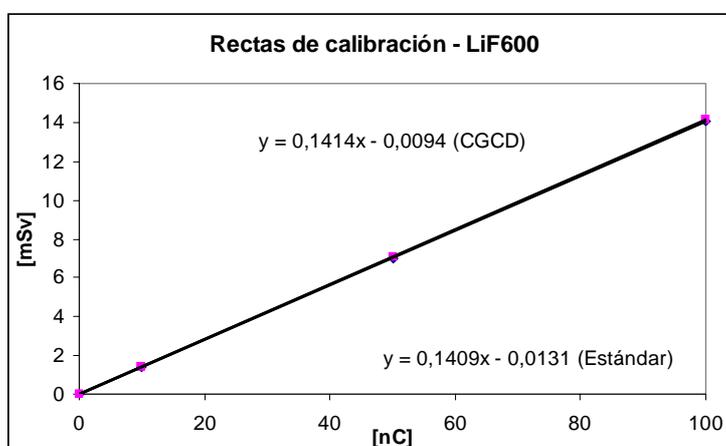
El procedimiento para LiF-600 fue idéntico al anterior y los resultados se ejemplifican con el siguiente caso particular (Tablas 5.3 y 5.4; Fig. 5.2).

**Tabla 5.3.** Resumen de la calibración de LiF-600 para el análisis estándar.

Dosis [mSv]	Promedio [nC]	Desv.Est. [nC]	Diferencia [nC]
0	2,0317	0,2356	0,0000
1	7,7253	0,2096	5,6935
10	66,6175	8,9577	64,5857

**Tabla 5.4.** Resumen de la calibración de LiF-600 para CGCD.

Dosis [mSv]	Promedio [nC]	Desv.Est. [nC]	Diferencia [nC]
0	1,7696	0,0646	0,0000
1	7,9241	0,1399	6,1545
10	66,5083	8,6107	64,7387



**Figura 5.2.** Rectas de calibración para los TLD LiF-600 obtenidas con el análisis estándar y con CGCD.

De esta calibración de LiF-600 surge una dosis mínima detectable de 0,1089 mSv para el análisis estándar y de 0,0299 mSv para CGCD.

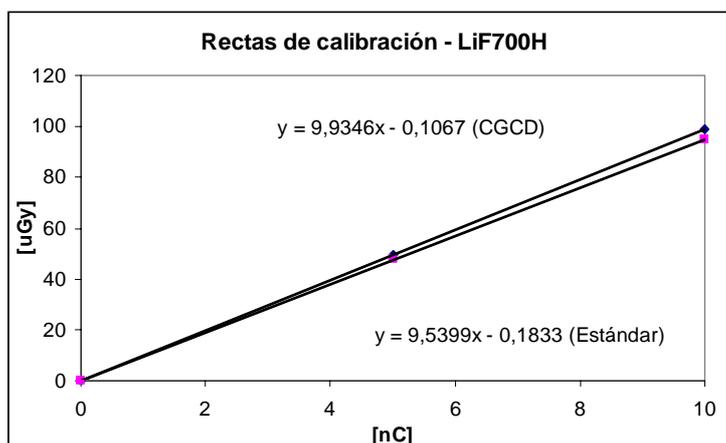
El procedimiento seguido para los dosímetros ambientales LiF-700H fue similar al de los dosímetros personales, con la salvedad de que la calibración se hizo en KERMA en aire y se tomaron tres puntos para la determinación de la recta de calibración. Los resultados de un caso testigo se resumen a continuación.

**Tabla 5.5.** Resumen de la calibración de LiF-700H para el análisis estándar.

KERMA [μGy]	Promedio [nC]	Desv.Est. [nC]	Diferencia [nC]
0	0,0694	0,0662	0,0000
30	3,3014	0,1886	3,2319
60	6,0960	0,3104	6,0266
90	9,6022	0,7961	9,5327

**Tabla 5.6.** Resumen de la calibración de LiF-700H para CGCD.

KERMA [μGy]	Promedio [nC]	Desv.Est. [nC]	Diferencia [nC]
0	0,0603	0,0688	0,0000
30	3,2172	0,2610	3,1568
60	5,9109	0,3555	5,8506
90	9,2143	0,9560	9,1540



**Figura 5.3.** Rectas de calibración para los TLD LiF-700H obtenidas con el análisis estándar y con CGCD.

En este caso, la calibración arrojó un KERMA mínimo detectable de 1,8948 μGy para el análisis estándar y 2,0496 μGy para CGCD.

### 5.1.3. Incertidumbre del sistema para bajas dosis.

En las tablas 5.7, 5.8 y 5.9 se muestra la incertidumbre del sistema para los diferentes casos y niveles de dosis medidos, comparando el análisis estándar con CGCD.

Los datos de las tablas 5.7, 5.8 y 5.9 claramente muestran que a niveles de dosis tan bajos como los de este trabajo, la incertidumbre obtenida en las mediciones, para un nivel de confianza igual a tres desviaciones estándares, es similar en ambos casos, lo cual era lo que se esperaba, pues la deconvolución de curvas *glow* para dosis menores a 1 mSv no aporta una mejora apreciable. Sin embargo, la gran ventaja que presenta el análisis mediante CGCD, es la aproximación de la señal de fondo mediante una función matemática (ecuación (5.1)), con lo cual se reduce el tiempo de lectura de dosímetros a la mitad, pues evita la segunda lectura. Esto es una gran ventaja en servicios de dosimetría que cuentan con varias centenas de usuarios.

**Tabla 5.7.** Incertidumbre a bajas dosis para LiF-700: CGCD comparado con el análisis estándar.

Dosis [mSv]	Análisis estándar [%]	Análisis CGCD [%]
0	7,8463	10,1786
1	5,8050	5,7661
10	6,7497	6,7945

**Tabla 5.8.** Incertidumbre a bajas dosis para LiF-600: CGCD comparado con el análisis estándar.

Dosis [mSv]	Análisis estándar [%]	Análisis CGCD [%]
0	18,0939	19,9283
1	4,7201	5,0803
10	5,1555	5,4867

**Tabla 5.9.** Incertidumbre a bajas dosis para LiF-700H: CGCD comparado con el análisis estándar.

KERMA [ $\mu$ Gy]	Análisis estándar [%]	Análisis CGCD [%]
30	7,1120	7,2322
60	6,2536	7,2141
90	5,9323	7,3210

## 5.2. Estimación del tiempo transcurrido desde la irradiación.

El tiempo transcurrido desde una exposición accidental guarda relación con el tratamiento médico a aplicar posterior a la exposición<sup>(35)</sup>. La estimación del tiempo transcurrido también puede contribuir a la determinación de la causa del accidente como también reducir la incertidumbre en la estimación de la dosis neutrónica proveniente de detectores de activación en el caso de exposición simultánea a rayos gamma y neutrones. Las diferentes tasas de *fading* de varios picos *glow* en la curva *glow* conducen a intensidades relativas variables de picos *glow* como una función del tiempo posterior a la irradiación y, en consecuencia, estas intensidades relativas pueden utilizarse como una medida del tiempo transcurrido desde la exposición accidental.

Algunas complicaciones en la estimación del tiempo transcurrido pueden surgir de varios factores:

- Una dependencia con la temperatura del *fading* (especialmente probable para picos *glow* de baja temperatura), la estimación del tiempo transcurrido requeriría entonces algún conocimiento del perfil de almacenamiento desde la exposición accidental.

- Propiedades de *fading* dependientes del tiempo transcurrido entre la lectura previa o recocido y la exposición accidental.
- Propiedades de *fading* dependientes de la dosis, lo cual puede aparecer, por ejemplo, cuando un pico *glow* en particular no sigue una cinética de primer orden; entonces la estimación del tiempo transcurrido requeriría curvas de calibración en función de la dosis.
- Si la dosis debida a la exposición accidental está superpuesta con una dosis de fondo constante y significativa, la estimación del tiempo transcurrido a partir de la forma de la curva *glow* también se hace problemática debido al crecimiento y decaimiento de la señal TL debida a la señal de fondo.
- La forma de la curva *glow* y su dependencia temporal también puede depender de la energía promedio del campo de irradiación y de la presencia de neutrones.

La exactitud de la estimación del tiempo transcurrido dependerá fuertemente del esfuerzo puesto en la calibración del comportamiento del *fading* como función de estos parámetros: temperatura, dosis de la exposición accidental, relación entre la dosis de la exposición accidental y la dosis constante de fondo y, finalmente, específico para los dosímetros LiF, el tiempo transcurrido entre la lectura previa o recocido y la exposición accidental y la densidad de ionización del campo de radiación.

Los resultados expuestos a continuación lejos están de ser concluyentes en el estudio del tiempo transcurrido desde una exposición accidental. En el mejor de los casos son una primera aproximación al tema y una invitación a continuar profundizando su estudio.

Los TLD utilizados fueron LiF-100 divididos en dos grupos según el recocido al que fueron sometidos:

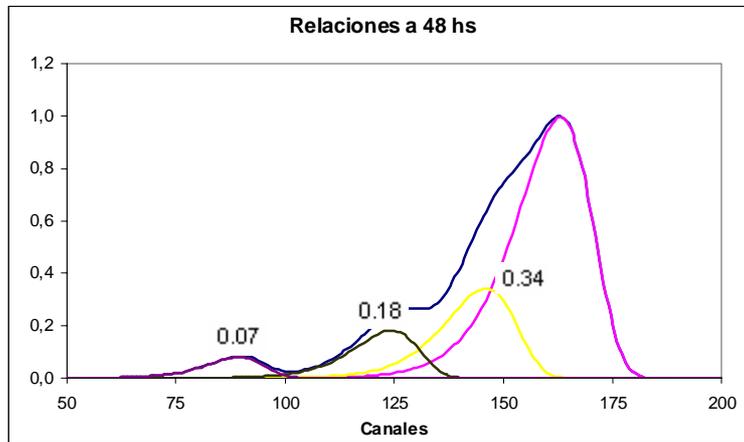
Grupo A: 1 hora a 400°C y 24 horas a 75°C.

Grupo B: 15 minutos a 240°C.

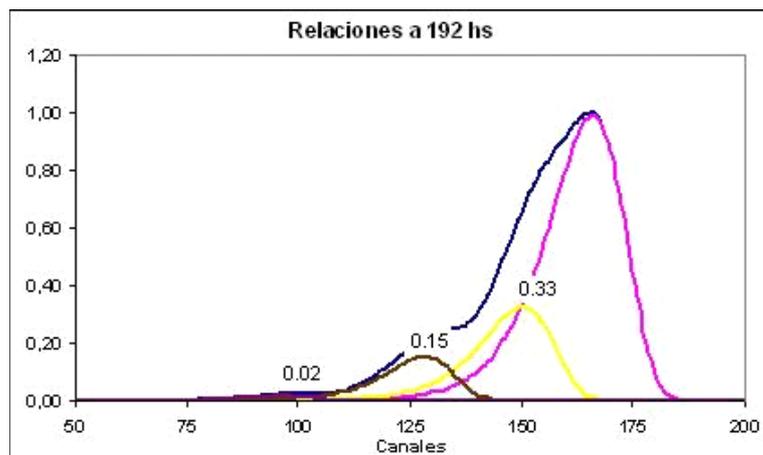
También se estableció un nuevo TTP (perfil de tiempo-temperatura de lectura) para este caso: rampa lineal de 10°C/seg desde 35°C hasta 280°C. Esta modificación en el TTP permitió la aparición en la curva *glow* de los picos de baja temperatura. Además, los TLD fueron almacenados en un armario a oscuras y a temperatura ambiente durante todo el tiempo que duró la prueba.

Los picos 2 y 3 de baja temperatura tienen vidas medias del orden de varias horas y unos pocos meses, respectivamente, los cuales, desafortunadamente, también

son dependientes de la temperatura de almacenamiento. Una complicación adicional de los LiF:Mn,Ti (como se mencionó previamente) es la dependencia del *fading* de los picos 2 y 3 con el tiempo entre el recocido previo o lectura y la exposición accidental. La figura 5.4 muestra ejemplos de las curvas *glow* obtenidas y las relaciones correspondientes entre los picos 2, 3 y 4 con el pico 5.

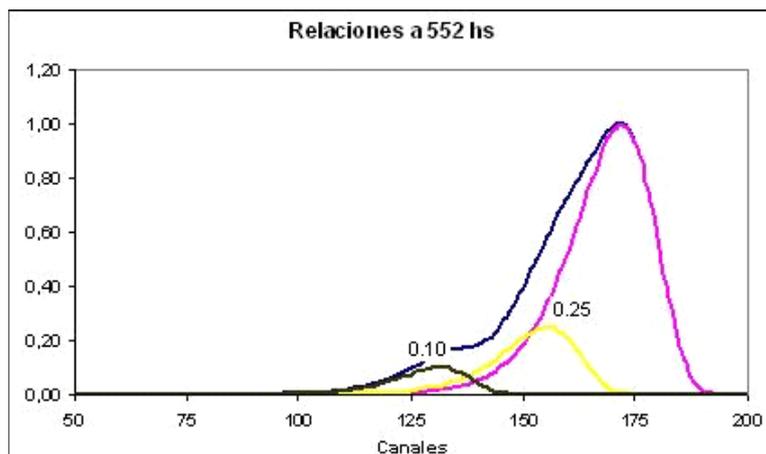


**Figura 5.4.a.** Relaciones entre los picos 2, 3 y 4 con el pico 5 calculadas 48 horas posteriores a la irradiación.

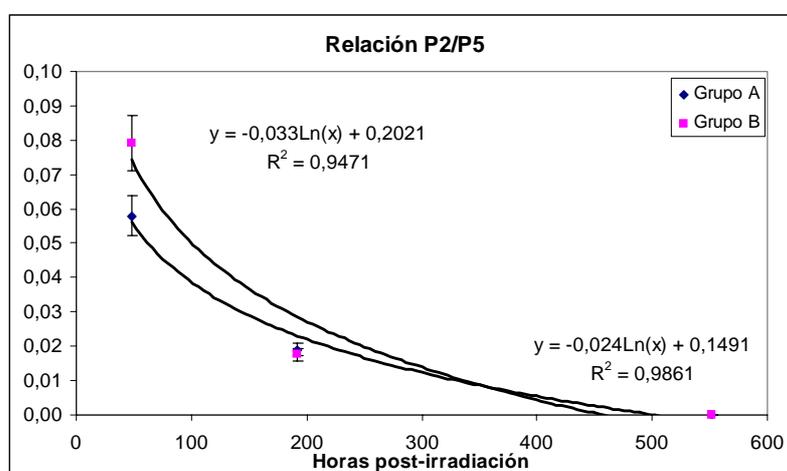


**Figura 5.4.b.** Relaciones entre los picos 2, 3 y 4 con el pico 5 calculadas 192 horas posteriores a la irradiación.

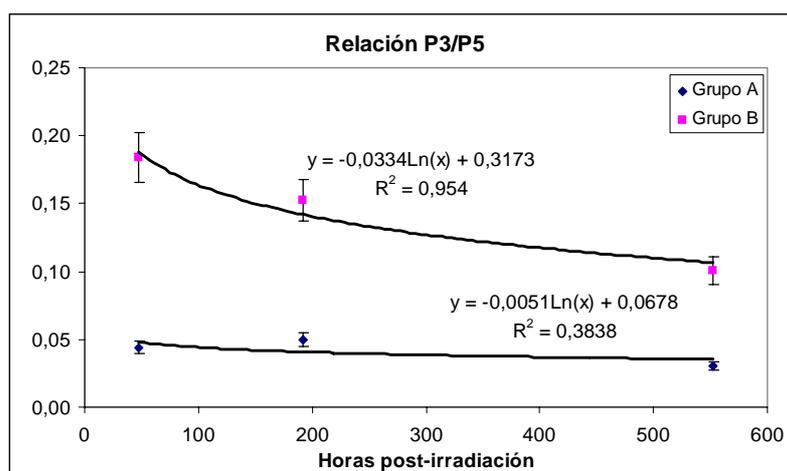
Las figuras 5.5, 5.6 y 5.7 muestran las relaciones de intensidades de los picos aproximadas con una regresión lineal de la forma  $f(t) = a - b \ln(t)$ . No se realizó ningún estudio sobre la dependencia con la temperatura de almacenamiento, o sobre la dependencia con el tiempo entre el recocido/lectura y la exposición anormal, lo cual se plantea como trabajo futuro.



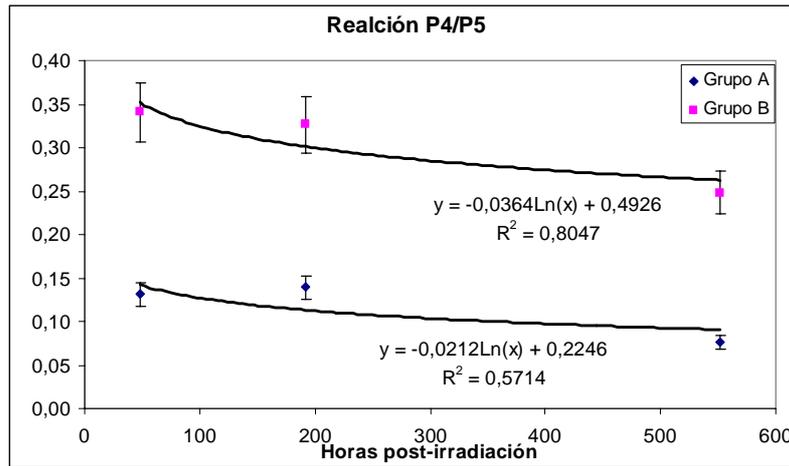
**Figura 5.4.c.** Relaciones entre los picos 3 y 4 con el pico 5 calculadas 552 horas posteriores a la irradiación. El pico 2 ha desaparecido totalmente.



**Figura 5.5.** Relación entre los picos 2 y 5 de LiF-100 como función del tiempo transcurrido.



**Figura 5.6.** Relación entre los picos 3 y 5 de LiF-100 como función del tiempo transcurrido.



**Figura 5.7.** Relación entre los picos 4 y 5 de LiF-100 como función del tiempo transcurrido.

### 5.3. CGCD aplicado a dosimetría de campos mixtos.

Tanto los neutrones como los rayos  $\gamma$  son radiaciones ionizantes que son atenuadas más o menos exponencialmente al pasar a través de la materia. Cada una es capaz de generar campos secundarios de la otra radiación, por medio de reacciones  $(n,\gamma)$  y  $(\gamma,n)$ , respectivamente. Las reacciones  $(\gamma,n)$  son sólo significativas para rayos  $\gamma$  de alta energía ( $\geq 10$  MeV), pero las reacciones  $(n,\gamma)$  pueden ocurrir a todas las energías de neutrones y son especialmente importantes en el caso de captura de neutrones térmicos, como para la reacción  $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$ . Como resultado, los campos de neutrones se encuentran normalmente “contaminados” por rayos  $\gamma$  secundarios.

Debido a que los neutrones generalmente tienen más efectividad biológica por unidad de dosis absorbida que los rayos  $\gamma$ , especialmente a bajas tasas de dosis, usualmente es deseable realizar dosimetría de una manera tal que permita contabilizar por separado las contribuciones de neutrones y rayos  $\gamma$  a la dosis.

Para evaluar por separado los componentes de neutrones y rayos  $\gamma$ , es necesario utilizar dispositivos sensibles a estas radiaciones. Uno de los dosímetros utilizados en este trabajo fue LiF-600, el cual tiene mayor sensibilidad a neutrones que a radiación gamma; el segundo, LiF-700, se eligió por ser insensible a neutrones. A continuación se describe el procedimiento.

La respuesta  $R_i'$  del pico glow  $i$  al campo mixto  $n-\gamma$  relativa a su sensibilidad a los rayos  $\gamma$  usados para calibración está dada por:

$$R_i' = k_i D_n + h_i D_\gamma \quad (5.2)$$

donde  $k_i$  es la sensibilidad del pico *glow*  $i$  a neutrones, relativa a su sensibilidad a los rayos  $\gamma$  usados para calibración, y  $h_i$  es la sensibilidad del pico *glow*  $i$  a fotones en el campos mixto  $n$ - $\gamma$ , relativa a su sensibilidad a los rayos  $\gamma$  de calibración. La calibración se realizó con una fuente de  $^{137}\text{Cs}$ .  $D_n$  es la dosis debida a neutrones y  $D_\gamma$ , la dosis debida a la radiación gamma.

Suponiendo que las sensibilidades de los picos *glow* a fotones en el campo mixto  $(n,\gamma)$  son iguales a sus sensibilidades a los rayos  $\gamma$  usados para calibración ( $h_1 = h_2 = 1$ )<sup>(38;39)</sup>, las sensibilidades relativas a neutrones están dadas por:

$$k_{1,2} = \frac{(R'_{1,2} - D_\gamma)}{D_n} \quad (5.3)$$

Dividiendo la ecuación (5.2) por la dosis total  $D_T = D_n + D_\gamma$ , queda:

$$\frac{R'_{1,2}}{D_T} = k_{1,2} + (h_{1,2} - k_{1,2}) \frac{D_\gamma}{D_T} \quad (5.4)$$

Las lecturas normalizadas de los TLD para los correspondientes picos *glow* sensibles a neutrones y gamma deberían ser diferentes<sup>(40)</sup>:

$$P_{1N} = \frac{P_1}{(P_1)_{\text{Cs-137}}} = D_\gamma + (\varepsilon_1 K) D_n \quad (5.5)$$

$$P_{2N} = \frac{P_2}{(P_2)_{\text{Cs-137}}} = D_\gamma + (\varepsilon_2 K) D_n \quad (5.6)$$

donde  $K$  es la relación de Kerma LiF/H<sub>2</sub>O a la energía de interés;  $P_1$  es la altura del pico *glow* sensible a gamma;  $P_2$ , la altura del pico *glow* sensible a neutrones;  $P_{1N}$  y  $P_{2N}$ , las alturas normalizadas con la radiación gamma de calibración. De estas ecuaciones surge que las dosis de neutrones, gamma y total son:

$$D_n = \frac{P_{2N} - P_{1N}}{(\varepsilon_2 K) - (\varepsilon_1 K)} \quad (5.7)$$

$$D_\gamma = \frac{\frac{\varepsilon_2 K}{\varepsilon_1 K} P_{1N} - P_{2N}}{\frac{\varepsilon_2 K}{\varepsilon_1 K} - 1} \quad (5.8)$$

$$D_{\text{total}} = D_n + D_\gamma \quad (5.9)$$

donde  $\varepsilon_1$  es la sensibilidad del pico *glow* sensible a radiación gamma y  $\varepsilon_2$  es la sensibilidad del pico *glow* sensible a neutrones. Cuanto mayor es la diferencia  $(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)$  y mayor la relación de Kerma  $K$ , mayor será la exactitud en la determinación de la dosis.

Dada la importancia que tiene la dosimetría de campos mixtos, se plantea como trabajo futuro, a través de una simulación Monte Carlo<sup>(41)</sup> y experimentalmente, el cálculo de los factores  $k_{1,2}$  y  $h_{1,2}$  por medio de una regresión lineal de múltiples valores  $R'_1/D_T$  o  $R'_2/D_T$  y  $D_\gamma/D_T$ , siendo conocidas las relaciones  $D_\gamma/D_T$  para múltiples condiciones de medición. Esta variación de  $D_\gamma/D_T$  se llevará a cabo por medio de tres procedimientos: diferentes profundidades en el fantoma, diferentes tamaños de campo, y exposición adicional de radiación gamma de  $^{137}\text{Cs}$  y/o  $^{60}\text{Co}$ . Los significados de  $k_{1,2}$ ,  $h_{1,2}$ ,  $R'_1/D_T$ ,  $R'_2/D_T$  y  $D_\gamma/D_T$  son los mismos que los expresados en la ecuación 5.4.

#### **5.4. Cálculo de las correcciones por *fading* para LiF-700H usando CGCD.**

Usualmente el término “*fading*” se define como la pérdida (o ganancia) de señal TL durante o posterior a la irradiación. El *fading* se asocia frecuentemente con un cambio en la señal TL por unidad de dosis debido a la pérdida de portadores de carga de las trampas, o la interacción entre trampas ocupadas, es decir, centros trampa que han capturado cargas luego de la irradiación. Obviamente también puede haber interacciones entre trampas ocupadas y trampas no ocupadas conduciendo a cambios en sensibilidad y/o *fading* durante la irradiación, por lo que estas definiciones lejos están de ser perfectas<sup>(36)</sup>.

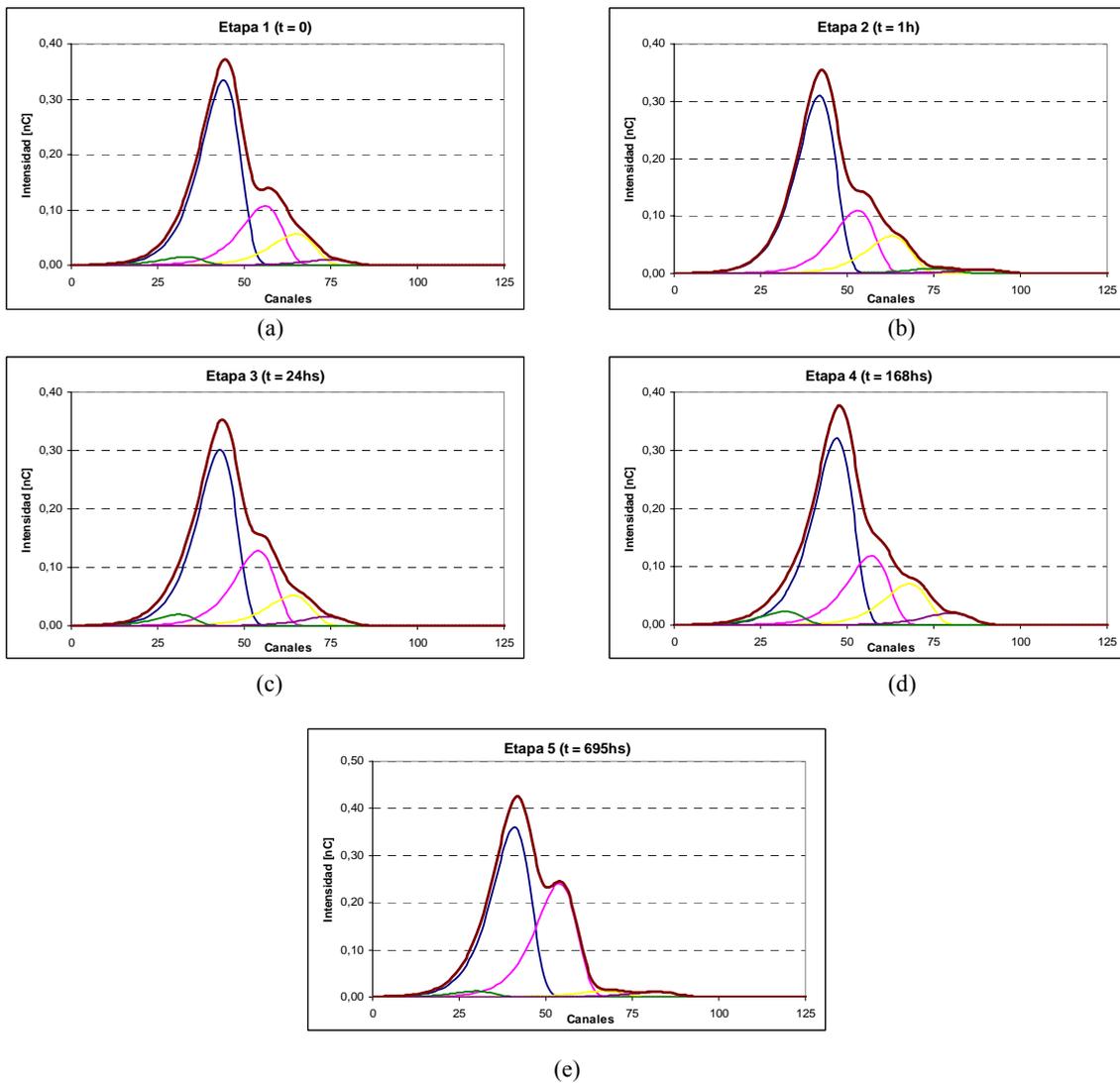
La necesidad de conocer el *fading* de los chips LiF-700H surgió como consecuencia de su empleo en un plan de dosimetría ambiental en el Centro Atómico Bariloche.

El procedimiento para estudiar el *fading* de los dosímetros LiF-700H fue el siguiente: se tomaron dos grupos de quince dosímetros cada uno; un grupo fue irradiado con una dosis de 90  $\mu\text{Gy}$  y el grupo restante no se irradió (ceros). La lectura se realizó en cinco etapas: (1) inmediatamente después de la irradiación ( $t = 0$ ); (2) una hora posterior a la irradiación ( $t = 1$  hs); (3) un día después de la irradiación ( $t = 24$  hs); (4) una semana posterior a la irradiación ( $t = 168$  hs) y, (5) aproximadamente un mes posterior a la irradiación ( $t = 695$  hs). Todos los chips fueron recocidos y leídos según se explica en el capítulo 4 y almacenados a temperatura ambiente y a oscuras. A continuación se resumen los resultados obtenidos.

**Tabla 5.10.** Estimación del *fading* para LiF-700H.

Tiempo [hs]	Ceros [nC]	Dosis [nC]	D-C [nC]	% señal inicial
0	0,0821	9,5027	9,4206	100
1	0,0813	8,8197	8,7383	107,8074
24	0,3647	9,4317	9,0670	103,8999
168	1,6333	11,4800	9,8467	95,6723
695	6,7617	16,8097	10,0480	93,7556

En otro caso estudiado, siguiendo el procedimiento descrito en el párrafo anterior se obtuvieron los resultados graficados en las figuras 5.8, 5.9 y 5.10.

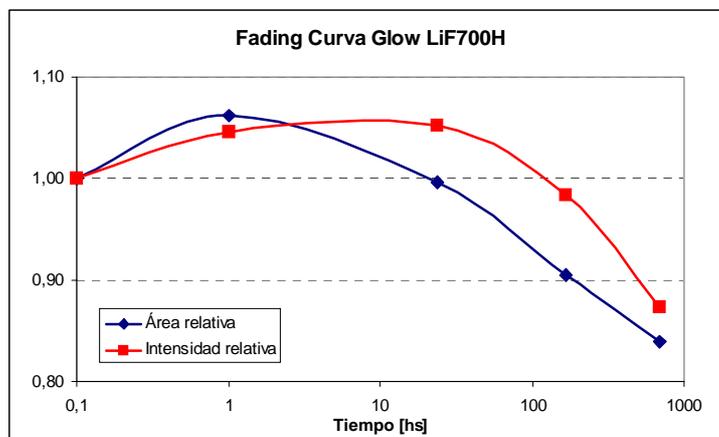


**Figura 5.8.** Deconvolución de la curva *glow* de LiF 700H para cada una de las etapas. Sólo se muestran los primeros 125 canales porque es allí donde se concentra la información más significativa. (a)  $t = 0$ ; (b)  $t = 1h$ ; (c)  $t = 24hs$ ; (d)  $t = 168hs$ ; (e)  $t = 695hs$ .

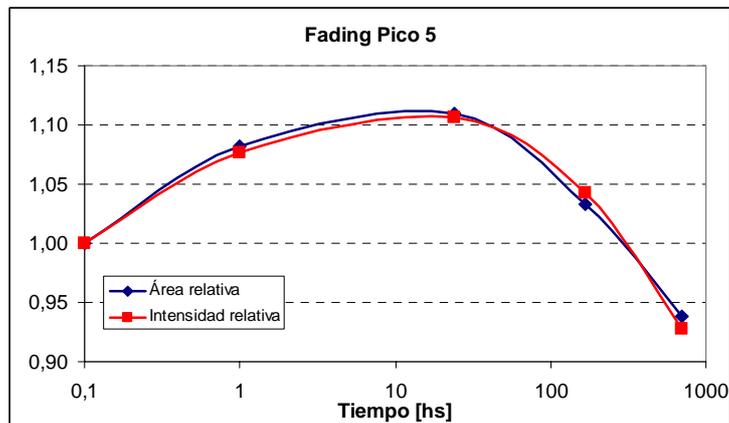
El procedimiento de recocido y lectura sólo permite visualizar en la curva *glow* los picos de alta temperatura, los cuales son muy estables térmicamente. Es decir, en un

período de integración de aproximadamente un mes las variaciones observadas en las intensidades de los picos *glow* son mínimas. No obstante, en la figura 5.8 se aprecia cómo a medida que transcurre el tiempo toda la información se concentra en el pico 5.

Los resultados del desvanecimiento de la señal correspondiente al pico 5 y a la curva total de los chips LiF-700H, se muestran en las figuras 5.9 y 5.10. Durante las primeras horas, el TLD exhibe un incremento de la señal. El máximo ocurre una hora post-irradiación, y, como se observa en la figura 5.9, debido al reacomodamiento de la estructura interna, al cabo de aproximadamente 24 horas se tiene nuevamente la totalidad del área y luego de aproximadamente 100 horas se recupera la intensidad total de la curva.



**Figura 5.9.** Variación del *fading* de la curva total en función del tiempo.



**Figura 5.10.** Variación del *fading* del pico 5 en función del tiempo.

Una forma de verificar las tasas de *fading* obtenidas experimentalmente para los diferentes picos de la curva *glow* de los LiF-700H es considerar, como se mantuvo a lo largo de todo este trabajo, que los picos responden a una cinética de primer orden. Esta suposición permite un cálculo teórico del tiempo de vida promedio del pico 5 basada en la expresión  $\tau = S^{-1} \exp(-E/kT)$ . Buscando información sobre  $S$  en la literatura<sup>(36)</sup> y

combinando esa información con los valores de  $E$  y  $T$  calculados en la deconvolución, se obtuvieron tiempos de vida promedio,  $\tau$ , entre 0,1 segundo y 7 años, de difícil ayuda para la estimación de las tasas de *fading*.

De lo expuesto se deduce que el crecimiento del pico 5 de los TLD-700H (LiF:Mg,Cu,P) tiene una respuesta a la radiación ionizante muy compleja. Esto hace que las correcciones por *fading* sean de una universalidad y exactitud cuestionables con la información disponible. Son necesarios estudios más exhaustivos del comportamiento de cada uno de los picos *glow* bajo diferentes rutinas de recocido y condiciones ambientales para poder caracterizar adecuadamente el *fading* de los TLD-700H.

## **CAPÍTULO 6**

### **“CONCLUSIONES”**

---

## Conclusiones

---

Los dosímetros LiF:Mn,Ti y LiF:Mg,Cu,P tienen un número atómico equivalente cercano al del agua y al del tejido humano, lo cual los convierte en una poderosa herramienta para la cuantificación de la dosis recibida por el trabajador expuesto a radiaciones ionizantes.

El rango de aplicaciones de la CGCD es mucho más amplio que lo expuesto en este trabajo y los resultados obtenidos son una primera aproximación a la gran utilidad y poderío de esta herramienta matemática. No obstante, en los casos citados, ha demostrado ser un instrumento sumamente útil y valioso en la disminución del tiempo de lectura de dosímetros debido a la capacidad de ajustar la señal de fondo con una función matemática.

En los niveles de dosis con los que se trabaja en dosimetría personal ( $< 10$  mSv), la mejora en cuestiones de incertidumbre en el cálculo de dosis y en la determinación de la dosis mínima detectable no es significativa y los resultados alcanzados son comparables a aquéllos obtenidos con el método empleado actualmente en el Grupo de Protección Radiológica del Centro Atómico Bariloche (denominado Método Estándar a lo largo de todo este trabajo). Este rendimiento de la CGCD en niveles bajos de dosis, es debido a un elevado componente de ruido en la señal, lo que obliga a hacer hincapié en el algoritmo de suavizado utilizado antes de la deconvolución propiamente dicha, con el fin de remover solamente las puntas, como se menciona en el Capítulo 4.

Dentro de las aplicaciones mencionadas, las de mayor interés son la estimación del tiempo post-irradiación y la dosimetría de campos mixtos. La primera permite un cálculo estimativo del momento en que se produjo una exposición accidental, tomando como referencia la tasa de *fading* de los diferentes picos *glow*. A pesar de la escasa estadística con la que se contó en este trabajo, el resultado obtenido fue satisfactorio, encontrando comportamientos similares a los expuestos en forma teórica y experimental en la literatura relacionada.

En todos los casos, de acuerdo con lo consultado en la literatura, la CGCD y sus aplicaciones serían una herramienta sumamente útil en situaciones de interés clínico, donde los niveles de dosis son mucho mayores que en la dosimetría personal y la

relación señal-ruido mejora notablemente. En especial, sería muy interesante el estudio y evaluación de dosis en presencia campos de radiación gamma y mixtos en radioterapia, lo que permitiría una mejor estimación de la medida del éxito de un tratamiento al poder tener en cuenta la efectividad biológica de ambos tipos de radiaciones (neutrones y gamma). Este punto no pudo verificarse experimentalmente debido a las características de la instalación donde se desarrolló la tesis y se plantea como un futuro trabajo de simulación por software.

Una de las principales dificultades encontradas en el desarrollo del trabajo fue el escaso tiempo (cuatro meses) para la adquisición de muestras y una cantidad acotada de dosímetros termoluminiscentes, lo que se puso de manifiesto en el análisis estadístico de los resultados, siendo notable, por ejemplo, en el estudio del *fading*.

Finalmente, lo desarrollado aquí es simplemente una invitación a interiorizarse en un método de análisis que se conoce desde hace aproximadamente tres décadas y el cual sigue perfeccionándose día a día.

## Referencias

1. Randall, J. T.; Wilkins, M. H. F. *Phosphorescence and Electron Traps 1. The Study of Trap Distributions*. Proc. R. Soc. A 184, pp. 366-389 (1945).
2. Chen, R. *On the Order of Kinetics in the Study of Thermoluminescence*. J. Phys. D: Appl. Phys. 16, L107-L114 (1983).
3. Fleming, R. J. *Activation Energies and Temperature Dependent Frequency Factors in Thermally Simulated Luminescence*. J. Phys. D: Appl. Phys. 23, pp. 950-954 (1990).
4. McKeever, S. W. S.; Horowitz, Y. S. *Charge Trapping Mechanism and Microdosimetric Processes in Lithium Fluoride*. Radiat. Phys. Chem. 36, pp. 35-36 (1990).
5. Levy, P. W. *Thermoluminescence in Systems not Subject to the Usual Approximations for First Order and Second Order Kinetics*. Radiat. Eff. 72, pp. 259-264 (1983).
6. Halperin, A.; Braner, A. A. *Evaluation of Thermal Activation Energies from Glow Curves*. Phys. Rev. 117, 408 (1960).
7. Kelly, P.; Laubitz, M. J., Braunlich, P. *Exact Solutions of the Kinetic Equations Governing Thermally Stimulated Luminescence and Conductivity*. Phys. Rev. B 4, pp. 1960-1968 (1971).
8. Bull, R. K., McKeever, S. W. S., Chen, R., Mathur, V. K., Rhodes, J. F., Brown, M. D. *Thermoluminescence Kinetics for Multipeak Glow Curves Produced by the Release of Electrons and Holes*. J. Phys. D: Appl. Phys. 19, pp. 1321-1334 (1986).
9. Dussel, G. A.; Bube, R. H. *Theory of Thermally Stimulated Conductivity in a Previously Photoexcited Crystal*. Phys. Rev. 155, 764 (1967).
10. Garlick, G. F. J.; Gibson, A. F. *The Electron Trap Mechanism of Luminescence in Sulphide and Silicate Phosphors*. Proc. Phys. Soc. 60, pp. 574-589 (1948).
11. Levy, P. W. *Recent Developments in Thermoluminescence Kinetics*. Nucl. Tracks 10, pp. 21-32 (1985).
12. May, C. E.; Partridge, J. A. *TL Kinetics of Alpha-irradiated Alkali Halides*. J. Chem. Phys. 40, 1401 (1964).
13. Kirsch, Y. *Kinetic Analysis of Thermoluminescence*. Phys. Status Solidi a 129, pp. 15-48 (1992).
14. Chen, R.; Kristianpoller, N.; Davidson, Z.; Visocekas, R. *Mixed First and Second Order Kinetics in Thermally Stimulated Processes*. J. Lumin. 23, 293 (1981).

15. Braunlich, P.; Scharman, A. *Approximate Solution of Schons Balance Equations for the TL and TSC of Inorganic Photoconductivity Crystals*. Phys. Status Solidi a 18, 307 (1966).
16. Levy, P. W. *Thermoluminescence Kinetics in Systems more General than the Usual 1<sup>st</sup> and 2<sup>nd</sup> Order Kinetics*. J. Lumin. 31, pp. 133-135 (1984).
17. McKeever, S. W. S. *Thermoluminescence of Solids*. (Cambridge University Press) (1985).
18. Hornyak, W. F.; Chen, R. *Thermoluminescence and Phosphorescence with a Continuous Distribution of Activation Energies*. J. Lumin. 44, 73 (1989).
19. Lewandowski, A. C.; McKeever, S. W. S. *Generalised Description of Thermally Stimulated Processes without the Quasi-equilibrium Approximation*. Phys. Rev. B43, pp. 8163-8178 (1991).
20. Bonfiglioli, G.; Brovetto, P.; Cortese, C. *TL and F Centres, I. Theory*. Phys. Rev. 114, 951 (1959).
21. Grossweiner, L. I. *A Note on the Analysis of First Order Curves*. J. Appl. Phys. 24, 1306 (1953).
22. Chen, R. *On the Computation of the Integral Appearing in Glow Curve Theory*. J. Comput. Phys. 4, 415 (1969).
23. Podgorsak, E. B.; Moran, P. R.; Cameron, J. R. *Interpretation of Resolved Glow Curve Shapes in LiF (TLD-100) from 100 K to 500 K*. In: Proc. 3<sup>rd</sup> Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Riso Report 249 (Denmark: IAEA and Danish AEC) p. 1 (1971).
24. Horowitz, Y. S.; Yossian, D. *Computerized Glow Curve Deconvolution: The Case of LiF TLD-100*. J. Phys. D: Appl. Phys. 26, pp. 1331-1332 (1993).
25. Madsen, K.; Nielsen, H. B.; Tingleff, O. *Methods for Non-Linear Least Squares Problems*. Informatics and Mathematical Modelling, Technical University of Denmark. 2<sup>nd</sup> Edition, pp. 24-29, April 2004
26. Balian, H. G.; Eddy, N. W. *Figure of Merit (FOM), an Improved Criterion over the Normalised Chi-squared Test for Assessing Goodness-of-fit of Gamma Ray Spectra Peaks*. Nucl. Instrum. Methods 145, pp. 389-395 (1977).
27. Mistra, S. K.; Eddy, N. W. *IFOM, A Formula for Universal Assessment of Goodness-of-fit of Gamma Ray Spectra*. Nucl. Instrum. Methods 166, pp. 537-540 (1979).
28. Savitzky, A.; Golay, M. J. E. *Smoothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures*. Anal. Chem. 36 (8), pp. 1627-1639 (1964).

29. Mandowski, A.; Swiatek, J. *Determination of Trap Parameters From Generalised Initial Rise Equations*. Rad. Prot. Dos. Vol. 65, Nos. 1-4, pp. 55-58 (1996).
30. Figel, M.; Sprunck, M. *Fast Cooling And Computerised Glow Curve Deconvolution in Routine Personnel Monitoring With TLD-100*. Rad. Prot. Dos. Vol. 81, No. 4, pp. 259-264 (1999).
31. Perks, C. A.; Marshall, M. *Techniques for Thermoluminescence Glow Curve Analysis*. Radiat. Prot. Dosim. 38, pp. 261-269 (1991).
32. McKeever, J.; Walker, F. D.; McKeever, S. W. S. *Properties of the Thermoluminescence Emission from LiF:Mg,Cu,P*. Nucl. Tracks Radiat. Meas. 21, pp. 179-183 (1993).
33. Hoots, S. S.; Landrum, V. *Glow Curve Analysis for Verification of Dose in LiF Chips*. Health Phys. 43, pp. 905-912 (1982).
34. Furetta, C.; Tuyn, J. W. N.; Louis, F.; Azorin-Nieto, J. ; Gutierrez, A. ; Driscoll, C. M. H. *A Method for Determining Simultaneously the Dose and the Elapsed Time Since Irradiation using TLDs*. Int. J. Radiat. Appl. Instrum. A 39, pp. 59-69 (1988).
35. ICRP. *The Principles and General Procedures for Handling Emergency and Accidental Exposure of Workers*. Publication 28 (Oxford: Pergamon) Ann. ICRP 2(1) (1978).
36. Horowitz, Y. S. *Fading in LiF:Mg,Ti*. Radiat. Prot. Dosim. 32, pp. 147-148 (1990).
37. Scarnichia, H. E. *Discriminación de energía en dosimetría personal*. III Congreso Regional sobre Seguridad Radiológica y Nuclear (IRPA). Cuzco, Perú. (1995).
38. AAPM Report No. 7. *Protocol for neutron beam dosimetry*. Task Group No. 18 Fast Neutron Beam Dosimetry Physics Radiation Therapy Committee. (1980).
39. Shani, Gad. *Radiation Dosimetry. Instrumentation and Methods*. Second Edition. CRC Press LLC (2001).
40. Hoffmann, W.; Songsiriritthigul, P. *TLD-300 Dosimetry at Chiang Mai 14 MeV neutron beam*. Radiat. Prot. Dosim. Vol. 44 No. 1/4 pp. 301-304 (1992).
41. <http://www.fluka.org/fluka.php>
42. Moler, C. *Numerical Computing with MATLAB*. Electronic edition: The MathWorks, Inc., Natick, MA, 2004. <http://www.mathworks.com/moler>.