

## ساخت نانو سنسورهای جدید مغناطیسی بر پایه گرافن اکسید و اکسید آهن برای اندازه گیری آهنگ دز تشعشع گاما

شهباز فیضی<sup>۱\*</sup>، آنیتا عالیپور<sup>۱</sup>، پرویز اشتری<sup>۱</sup>، میلاد سمیعی متین<sup>۱</sup>

<sup>۱</sup>. پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی (۳۱۴۸۶۴۳۱۱۱) کرج - تهران.

**چکیده:** در این تحقیق تولید نانوذرات ترکیبی  $Fe_3O_4$  / اکسید گرافن در پلی وینیل استات و پلی متیل متاکریلات ( $Fe_3O_4/GO$ ) / PVAc و  $Fe_3O_4/GO / PMMA$  گزارش شد. این نانوکامپوزیت‌ها ویژگی‌های پردازش عالی، حساسیت بالا در برابر اشعه گاما و حلالیت خوب را از خود نشان دادند. فعل و انفعالات فوتوفیزیکی بین نانوذرات ترکیبی  $Fe_3O_4$  و اکسید گرافن و پلیمرها با استفاده از آشکارسازهای تماس اهمی با الکترودهای آبکاری شده با طلا بررسی و مقایسه شده است. افزایش در پاسخ فوتوالکتریک و خواص جذب گاما در نانو حسگرهای گاما ترکیبی  $Fe_3O_4$  / اکسید گرافن در مقایسه با سنسورهای غیر هیبریدی مشاهده شد.

**کلمات کلیدی:** نانو حسگرهای گاما،  $Fe_3O_4$ ، اکسید گرافن.

### Production of new magnetic nanosensors based on graphene oxide and iron oxide to measure the dose rate of gamma radiation

Shahzad Feizi<sup>1\*</sup>, Anita Alipour<sup>1</sup>, Parviz Ashtari<sup>1</sup>, Mailad Samii Matin<sup>1</sup>

1. Radiation Application Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, P.O.BOX: 3148643111, Karaj, Iran.

#### Abstract:

In this study, production of  $Fe_3O_4$  / graphene oxide hybrid nanoparticles in polyvinyl acetate and polymethyl methacrylate ( $Fe_3O_4/GO/PMMA$  &  $Fe_3O_4/GO/PVAc$ ) was reported. These nanocomposites showed the integrated properties of excellent processability, high sensitivity for gamma ray, and good solubility. The photophysical interactions between  $Fe_3O_4$  & graphene oxide hybrid nanosheets and polymers have been investigated and compared using ohmic contact detectors with gold electroplated electrodes. An increase in the photoelectric response and gamma harvesting properties in the  $Fe_3O_4$  / graphene oxide hybrid gamma sensors was observed with respect to non-hybrid sensors.

**Keywords:** gamma nanosensors,  $Fe_3O_4$ , graphene oxide.

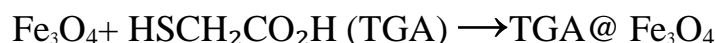
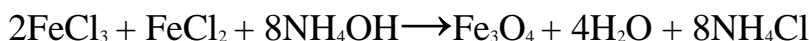
Email: sfeizi@aeoi.org.ir

## ۱. مقدمه:

امروزه استفاده از نانوذرات کربنی و نانوکامپوزیت‌ها در ساخت نانو حسگرها بسیار مورد توجه قرار گرفته است [۱]. مطالعات اخیر نشان داد که نمونه‌های گرافن اکسید (GO) می‌توانند به عنوان دزیومتر تابش غیرفعال برای ذرات آلفا در محدوده دزهای ۱/۲۲ تا ۴۷۹/۹۰ گری بر مبنای تغییر خواص ساختاری استفاده شوند [۲]. نتایج تحقیق عبدالصانی و همکاران همچنین کاربرد دزیومتری تغییرات ساختاری گرافیت در برابر تابش گاما را تأیید کرد [۳]. پیون و همکاران نشان داد که تابش گاما در کامپوزیت‌های حاوی گرافن گونه‌های پارامغناطیسی تولید می‌کند که می‌تواند به عنوان کاوشگر مورد استفاده قرار گیرد. آنها نشان دادند که نه گرافن و نه خود کامپوزیت سیگنال‌های تشدید چرخش الکترون را قبل از تابش نشان نمی‌دهند. آنها با غلظت گرافن ۰/۸ درصد وزنی به حداکثر مقدار سیگنال‌ها رسیدند (غلظت‌های بالاتر پاسخ کمتری نشان می‌دهند) [۴]. آداماش و همکاران برای توسعه ابر خازن‌های با عملکرد بالا رویکرد استفاده از الکترودهای کربنی را در نظر گرفتند که نتایج نشان داد که کاهش در اندازه ذرات و افزایش تخلخل کربن باعث افزایش ظرفیت ویژه الکترودها و کاهش مقاومت انتقال بار می‌شود [۵]. با توجه به نکات بالا بر آن شدیم تا با سنتز و افزودن نانو اکسیدهای آهن، به بررسی عملکرد نانوکامپوزیت‌های سه جزیی پارامغناطیسی در حسگرهای پرتوی گاما بپردازیم.

## ۲. روش کار:

محلول آبی nano-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> با لایه خارجی تیوگلیکولیک اسید طبق واکنش شیمیایی زیر تهیه شد.



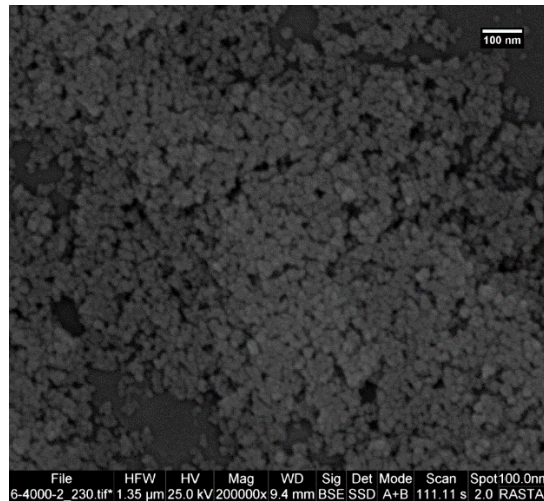
در این روش، محلول‌های کلرید آهن (III) (20 mmol, 5.41 g in 25 mL of distilled water) و کلرید آهن (II) (10 mmol, 1.99 g in 25 mL of 1.0 M HCl) با نسبت مولی ۲:۱ با هم مخلوط شدند. سپس محلول هیدروکسید آمونیوم (۱/۵ مولار به حجم ۱۶۰ میلی لیتر) با هم زدن شدید مکانیکی به مدت ۶۰ دقیقه در دمای اتاق به محلول اضافه شد. رسوب سیاه بلافاصله تشکیل شد و اجازه داده شد به مدت ۲۴ ساعت هم بخورد (شکل ۱). سپس از محلول جدا شد و چندین بار با هم زدن به مدت ۵ دقیقه در آب غیر یونیزه شسته شد. به مقدار یک گرم از نانو اکسید آهن سنتز شده مقدار یک گرم تیوگلیکولیک اسید اضافه شد و به مدت ۲۴ ساعت همزده شد. سپس محصول نهایی جداسازی شد و شسته شد و مجدداً در آب دی یونیزه پخش گردید. نمونه‌ها جهت اندازه‌گیری سایز به آزمایشگاه‌های تخصصی تصویربرداری SEM و TEM ارسال شدند (شکل ۲ و ۳).



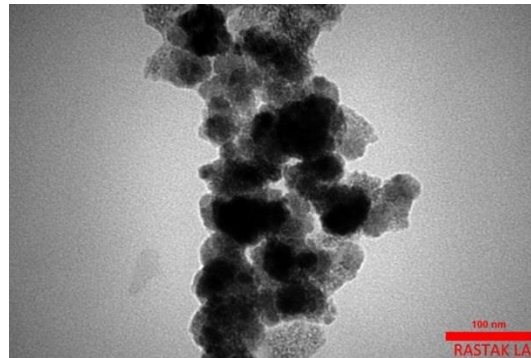
شکل ۱. شماتیک دستگاهوری سنتز نمونه اکسید آهن.

## ۱/۲ . سنتز گرافن اکسید:

گرافن اکسید (GO) با استفاده از روش هامر اصلاح شده مطابق با روشی که قبلاً گزارش شده بود سنتز شد [۶]. در این روش، پودر گرافیت (۲ گرم) و  $\text{NaNO}_3$  (۲ گرم) در ۴۵ میلی لیتر  $\text{H}_2\text{SO}_4$  میلی لیتر) پراکنده شدند. ، ۶ گرم پودر  $\text{KMnO}_4$  به مخلوط اضافه شد و دمای واکنش زیر ۵ درجه سانتیگراد نگه داشته شد. مواد به مدت ۲ ساعت تحت همان شرایط مخلوط می شود. سپس آب دیونیزه (۱۰۰ میلی لیتر) اضافه شد و به مدت ۳۰ دقیقه همزده شد. سپس دما افزایش یافت و در دمای ۹۵ درجه سانتیگراد قرار گرفت و مخلوط در آن دما برای ۳۰ دقیقه قرار گرفت. با افزودن ۳۰۰ میلی لیتر آب دیونیزه، این مخلوط تا ۴۰ درجه سانتیگراد سرد شد. برای خاتمه دادن به واکنش ۲۰ میلی لیتر محلول  $\text{H}_2\text{O}_2$  اضافه شد. رنگ محلول به زرد تغییر یافت. به منظور حذف یونهای فلزی اکسید گرافن، مخلوط فیلتر شده و با  $\text{HCl}$  رقیق شسته شد و سانتریفوژ شد. نمونه ها جهت اندازه گیری سایز به آزمایشگاه های تخصصی تصویربرداری SEM و TEM ارسال شدند.



شکل ۲. تصویربرداری SEM از نمونه  $Fe_3O_4$  تهیه شده.



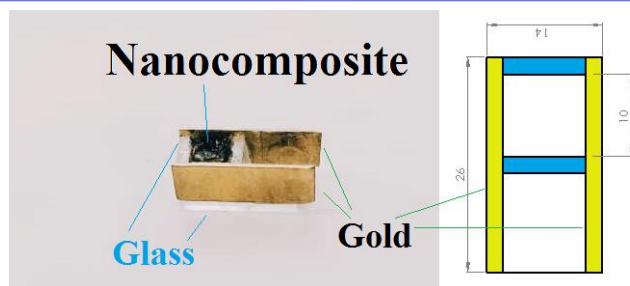
شکل ۳. تصویربرداری TEM از نمونه  $Fe_3O_4$  تهیه شده.

## ۲/۲. ساخت نانوحسگر اشعه گاما:

به ۲ میلی لیتر محلول استون: آب (۱:۱۰) و PVAc (۰/۴ گرم)، مقدار ۰/۸ میلی گرم (۰/۲٪ (وزنی / وزنی)) از مخلوط GO و  $Fe_3O_4$  (با نسبت ۴:۱ وزنی) اضافه شد. محلول شفاف حاصل به هم زده شده و برای تبخیر حلال ها گرم شد. بعد از اینکه حجم مخلوط به مقدار ۰/۷ میلی لیتر رسید، نانوکامپوزیت به سلولهای رسانا منتقل شدند و سلولها در یک شب در دمای اتاق نگهداری شدند تا خشک شوند. به جهت انجام مطالعات آماری ۳ نانوحسگر با این روش ساخته شد. جهت ساخت قطعه PMMA از حلال کلروفرم به جای آب و استون استفاده شد. (شکل ۴).

## ۳.۲. پرتودهی و اندازه گیری های الکتریکی:

نانوکامپوزیت ها با استفاده از یک منبع اشعه گاما  $^{60}Co$  (۱/۲۵ MeV) در محدوده تابش ۳۲/۶۴-۹۰/۶۸ میلی گری در دقیقه تحت تابش اشعه گاما قرار گرفتند.

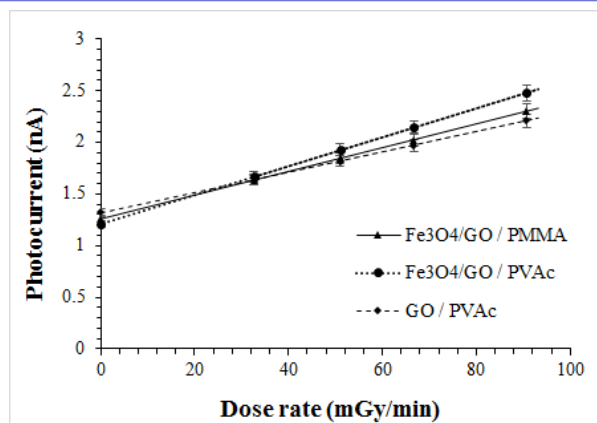


شکل ۴. تصویر نانوحسگر گاما ساخته شده.

نرخ دز با تغییر فاصله منبع تا سطح (SSD) از ۶۰ به ۱۰۰ سانتی متر و در یک زمینه مرجع  $10 \times 10$  سانتی متر مربع تغییر یافت. ولتاژ بایاس ۱۰۰ ولت برای اندازه گیری خصوصیات الکتریکی نانوکامپوزیتها روی سلولهای رسانا با یک الکترومتر SuperMAX، STANDARD IMAGING تنظیم شد. آزمایشات در آزمایشگاه های دزیمتری استاندارد ثانویه (SSDL) پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای انجام شد.

### ۳. نتایج و بحث:

شکل های ۲ و ۳ تصاویر TEM و SEM از نانوذرات آهن را نشان می دهد که اکثر ذرات دارای اندازه زیر ۳۰ نانومتر می باشند. این نانوذرات در بین ورقه های نانو GO قرار گرفته و با توجه به قابلیت بالای جذب اشعه گاما میزان حساسیت قطعه ساخته شده را بالا می برد. از طرفی این نانوذرات پارامغناطیسی با تشکیل یک میدان مغناطیسی داخلی (با وصل شدن بایاس ولتاژ) به ایجاد جریان توسط فتوالکترون ها کمک می نماید. با توجه به عدم حضور فتوالکترون ها در حالت جریان تاریک تاثیر این مغناطیسی داخلی در ایجاد جریان ناچیز است. شایان ذکر است با توجه به جایگزین شدن نانوذرات آهن (از لحاظ جرمی در نانوکامپوزیت) به جای اکسید گرافن (با هدایت الکتریکی بسیار بالاتر) میزان جریان تاریک به طور محسوسی کاهش یافته است که یک تغییر مثبت تلقی می شود. نتایج نمودار شکل ۵ حساسیت بالا قطعه ساخته شده را در آهنگ دز های متفاوت نشان می دهد. در این پژوهش سعی بر آن شد تا با حفظ میزان درصد جرمی نانوذرات (۰/۲ درصد) و تغییر ۲۰٪ جرمی نانوذرات از نانوذرات کربنی به نانوذرات مغناطیسی آهن قابلیت افزایش حساسیت و کاهش جریان تاریک مورد بررسی قرار گیرد که هردو مورد به خوبی محقق گردید. در مقایسه با مطالعه قبلی این گروه تحقیقاتی با نقاط کوانتومی [۱]، با توجه به درصد وزنی متفاوت دو کامپوزیت نمی توان در حال حاضر قیاس کمی انجام داد، ولی ماهیت ایجاد میدان مغناطیسی داخلی و کاهش جریان تاریک از برتری های اکسید آهن است که می بایست در رقابت با خاصیت کوانتیزه بودن نشر انرژی (دقت بالاتر)، نیمه رسانا بودن و دانسیته بالاتر کادمیوم تلوراید در پژوهش های بعدی مورد مطالعه قرار گیرد.



شکل ۵. منحنی های میزان آهنگ دز - جریان برای نانوکامپوزیت ها

#### ۴. نتیجه گیری:

ساخت دو نانوکامپوزیت سه جزئی جدید مبتنی بر اکسید گرافن، نانوذرات آهن و پلیمرهای آلی پلی وینیل استات و پلی متیل متا اکریلات را نشان داده شد که منجر به افزایش حساسیت اکسید گرافن با جریان تاریک کم شده است. نتایج خصوصیات ساختاری نانوذرات آهن با استفاده از آنالیزهای SEM و TEM تایید شد. نتایج نشان می دهد که PMMA و PVAc موادی امیدوار کننده ای به عنوان میزبان مواد نانو برای حسگرهای گاما با عملکرد بالا و قابلیت اطمینان بالا هستند. بنابراین انتظار می رود  $Fe_3O_4 / GO / PMMA$  و  $Fe_3O_4 / GO / PVAc$  نقش بالقوه ای را در دستگاه های مدرن سنسور گاما برای تشخیص تشعشع گاما در زمان واقعی نشان دهند.

#### ۵. مراجع:

1. Mohammad Hosein Mehrabian, Shahzad Feizi, Shahram Moradi Dehaghi, Cadmium telluride quantum dots/graphene oxide/poly vinyl acetate (CdTe QDs/GO/PVAc) nanocomposite: a novel sensor for real time gamma radiation detection, *Radiochimica Acta*, 2020,108, 483-490.
2. Eissa MF, El Roubi WMA. Effect of alpha particle irradiations on the structural properties of graphene oxide. *International Journal of Modern Physics B*. 2018 2018/12/20;32(31):1850343.
3. Sani SFA, Ismail SS, Almugren KS, Khandaker MU, Bradley DA. Dosimetric utility of structural changes in gamma irradiated graphite-rich pencils. *Radiation Physics and Chemistry*. 2020 2020/06/01;171:108703.
4. Piven' NP, Muradyan VE, Babenko SD, Allayarov SR, Sokolov EA. Paramagnetic centers in a gamma-irradiated polymer composite doped with graphene. *High Energy Chemistry*. 2010 2010/07/01;44(4):351-2.
5. Adhamash E, Pathak R, Qiao Q, Zhou Y, McTaggart R. Gamma-radiated biochar carbon for improved supercapacitor performance. *RSC Advances*. 2020;10(50):29910-7.
6. Yousef Fazaeli, Reza Rahighi, Ahmad Tayyebi, Shahzad Feizi, Synthesis, characterization and biological evaluation of a well dispersed suspension of gallium-68-labeled magnetic nanosheets of graphene oxide for in vivo coincidence imaging, *Radiochimica Acta*, 2017,105, 65-73.