



سنتر و مشخصه یابی نانوذرات اکسید بریلیم و بررسی خواص ترمولومینسانس آن ها در آشکارسازی تابش گاما

فیضی، شهزاد^{۱*} - فرجی، شادی^۲ - صبوری دودران، امیرعباس^۲ - عالیپور، آیتا^۱ - اشتیری، پرویز^۱ - شربتداران، معصومه^۳ - معتمدی سده، فرحناز^۴

۱. سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، پژوهشکده کاربرد پرتوها

۲. دانشگاه پیام نور، دانشکده فیزیک

۳. سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، پژوهشکده فیزیک و شتابگر

۴. سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، پژوهشکده کشاورزی هسته ای

چکیده: در این پژوهش نانوذرات اکسید بریلیم به روش پلیمر ژل سنتز شدند. مشخصه یابی محصول با استفاده از تکنیک های رایج مشخصه یابی نانومواد انجام شد. کیفیت اکسیدهای کلسینه شده در دماهای 700°C و 800°C بررسی و مقایسه شد. نتایج مشخصه یابی نشان داد نانوذرات حاصله در دمای کلسیناسیون 800°C یونیفرم تر و دارای مورفولوژی بیضوی بوده و اندازه ذرات در حدود 35 نانومتر است. سپس به بررسی ویژگی های ترمولومینسانس ماده پرداخته شد. منحنی درخشش دو پیک قابل اعتنا در دماهای $166/27^{\circ}\text{C}$ و $269/43^{\circ}\text{C}$ نشان داد. محل استقرار این دو پیک به شدت وابسته به دز تابیده و تا حدی وابسته به دمای آنیل شدن مواد می باشد. با کاهش دز به محدوده دز پایین، جابجایی پیک به دماهای بالاتر از 400°C اتفاق می افتد. همچنین شدت منحنی تابش ترمولومینسانس نمونه های بررسی شده با افزایش دز جذبی تا 1000 گری به صورت خطی و در دزهای کوچکتر از $0/1$ میلی گری به صورت تقریباً خطی افزایش یافت. بررسی های متنوع دیگری از جمله محو شدگی پاسخ، شناخت حداقل دما و حداقل زمان برای آنیل شدن و بررسی تغییرات پاسخ در سیکل های تکرار پذیری دزیمتر نیز انجام شد.

کلمات کلیدی: نانوذرات، اکسید بریلیم، ترمولومینسانس، گاما

مقدمه :

از زمانی که فارینگتون دانیلز و گروه تحقیقاتیش در دانشگاه ویسکانسین برای اولین بار استفاده از خاصیت ترمولومینسانس (TL) را بعنوان یک فن آوری در دزیمتری پرتو پیشنهاد کردند، بیش از 40 سال می گذرد [۱] و [۲] این گروه دریافتند که ماده پرتو دیده دارای انرژی ذخیره شده ای است که با حرارت آزاد می شود. در مورد بلورهای نارسانا، خط مسیر واپاشی بعضی از بارهای آزاد شده توسط گرما، به تولید نور (ترمولومینسانس) می انجامد. از آنجایی که فوتومولتی پلیمر تیوب قادر



است نورهای بسیار ضعیف را آشکار کند، روی هم رفته TL یک روش حساس برای آشکارسازی سابقه پرتوی بلور را در اختیار می‌گذارد. استفاده از پدیده ترمولومینسانس برای کاربردهای دزیمتری و عمرسنجی بسیار گسترش یافته است و به تبع آن مواد ترمولومینسانس گوناگونی همچون لیتیم فلوراید، آلومینیوم اکسید، کلسیم سولفات و کلسیم فلوراید به عنوان ماده اصلی دزیمترهای تجاری تولید شده و مورد استفاده قرار گرفته اند. اکسید بریلیم به عنوان یک ماده TLD معادل بافت ($Z_{eff}=7/13$)، سال های زیادی به عنوان رقیب بالقوه برای TLD-100 تبلیغ می شده است [۱]. این خصوصیت همراه با حساسیت TL مشابه با TLD-100، همچنین امکان ساخت در شکل صفحات سرامیکی سخت با کاربرد راحت، هدایت گرمایی خوب و قیمت کم بنظر می‌رسد آن را برای بسیاری گروه‌های تحقیقاتی جذاب نموده است، که منتج به تلاش‌های گسترده‌ای برای توسعه‌ی این ماده به عنوان یک ماده کارآمد در دزیمتری شده است [۲ و ۳]. هدف در این پژوهش سنتز برلیم اکسید و مطالعات اولیه ترمولومینسانس آن است تا در آینده در مقیاس تجاری و به شکل قرص به مرحله استفاده در ایران برسد.

دستورالعمل های تجربی

مواد و روش ها

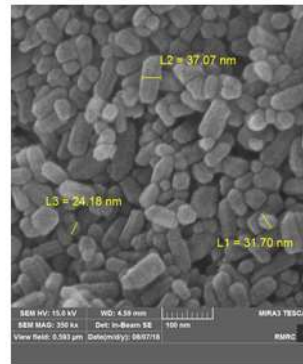
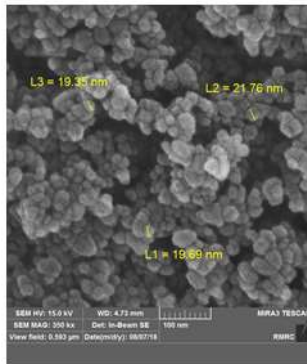
برلیم سولفات تتراهیدرات، آکریل امید، N,N-متیلن بیس آکریل امید، آمونیوم پرسولفات و آب مخصوص سنتز از کمپانی مرک خریداری شدند و بدون خالص سازی بیشترمورد استفاده قرار گرفتند. ثبت تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی با استفاده از MIRA3 TESCAN انجام شد. پرتو دهی نمونه ها با چشمه های کبالت -60 Picker v9 و PX-30 انجام شد. ثبت منحنی های درخشش با قرائتگر TLD-reader 7103 انجام شد.

سنتز نانوذرات بریلیم اکسید

۱۳ گرم برلیم سولفات تتراهیدرات در ۵۰ ml آب مخصوص سنتز در یک فلاسک ۲۵۰ml حل شد. ۰/۱۵۱ گرم N,N-متیلن بیس آکریل امید و ۳/۰۱۳ گرم آکریل امید به محلول واکنش اضافه شد. سپس ۰/۵ میلی لیتر محلول ۱۰٪ آمونیوم پرسولفات به عنوان آغازگر به محلول درون فلاسک اضافه شد و دمای محلول تا ۶۰°C در حمام روغن افزایش یافت و به مدت یک ساعت جهت تکامل واکنش در این دما نگهداری شد. سپس ژل در دمای ۸۰°C تحت خلاء خشک شد. پس از خشک شدن کامل در یک هاون عقیق تا بیشترین حد ممکن ساییده و به پودر تبدیل شد. سپس بر اساس پایداری احتمالی قالب های آلی در دو قسمت در دو دمای ۷۰۰°C و ۸۰۰°C کلسینه شد.

مشخصه یابی

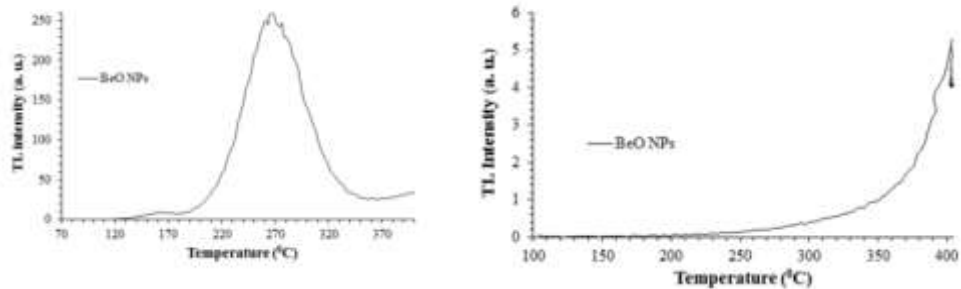
به منظور بررسی ریخت شناسی نانوذرات BeO سنتز شده و کلسینه شده در دو درجه حرارت مختلف، تصویر SEM در بزرگ‌نمایی FESEM (۵۰۰۰ برابر) تهیه شد. این تصاویر در شکل ۱ ارائه شده‌اند. می‌توان مشاهده کرد که نانوذرات BeO سنتز شده در ۷۰۰ درجه سانتیگراد شکل تقریباً کروی دارند. اندازه این ذرات تقریباً در حدود ۱۹ تا ۲۲ نانومتر است و می‌توان ریخت شناسی خوشه‌ای برای آن گزارش کرد. برای نمونه‌هایی که در 800°C کلسینه شده‌اند، شکل نانوذرات به صورت یکنواخت (یونیفرم‌تر) و تقریباً به شکل الپسوتیئید (بیضوی) می‌باشد. اندازه آنها در گستره ۲۴ تا ۳۷ نانومتر است.



شکل ۱. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی نانوذرات بریلیم اکسید کلسینه شده در دمای 700°C (چپ) و دمای 800°C (راست).

بررسی پاسخ ترمولومینسانس دزیمتری

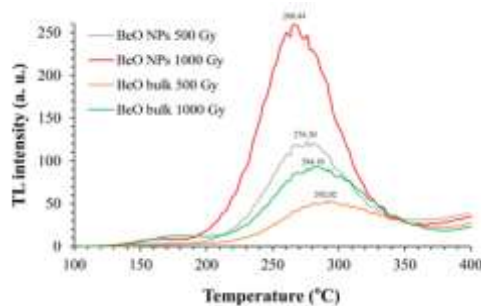
برای بررسی پاسخ ترمولومینسانس نمونه‌های تهیه شده در این مطالعه نمونه‌ها با دزهای ۰/۱، ۰/۵ و ۱ میلی‌گری (دزهای پایین) و ۱۰۰، ۵۰۰ و ۱۰۰۰ گری (دزهای بالاتر) توسط چشمه کبالت-۶۰ پرتودهی شدند. با توجه به اینکه امکان قرائت پاسخ ترمولومینسانس تا دمای 400°C میسر می‌باشد بررسی پاسخ‌ها نشان داد که با افزایش دز جا به جایی پیک‌ها به دماهای پایین‌تر اتفاق می‌افتد. نمودار پاسخ TL بر حسب دما برای دز ۱۰۰۰ گری در شکل ۲ (چپ) ارائه شده است. قرائت تا این دما و در این دز دو پیک را در دماهای $166/27^{\circ}\text{C}$ و $269/43^{\circ}\text{C}$ نشان می‌دهد. با کاهش دز جذبی دمای ظهور پیک‌ها افزایش می‌یابد و این اتفاق تا جایی رخ می‌دهد که پیک اصلی که پیک دوم می‌باشد در دماهای محدوده قرائت دستگاه مشاهده نمی‌شود. نمودار پاسخ TL بر حسب دما برای دز ۰/۱ میلی‌گری در شکل ۲ راست ارائه شده است. مشاهده می‌شود که در این نمودار قله اصلی در دماهای بالاتر از 400°C در حال ظهور است.



شکل ۲. منحنی تابش ترمولومینسانس نانوذرات بریلیم اکسید سنتز شده برای دزهای بالا (چپ) و پایین (راست).

اثر سایز ذرات بر منحنی درخشش

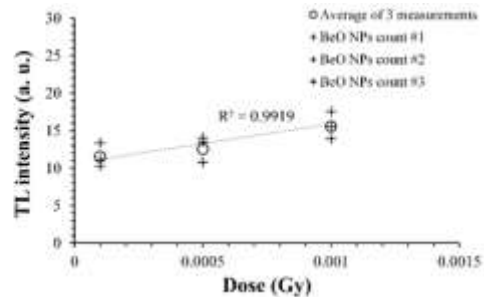
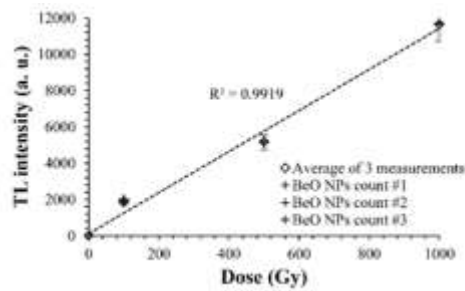
دمای ظهور پیک اصلی در منحنی درخشش نانوذرات بریلیم اکسید و بریلیم اکسید حجیم متفاوت است. پیک ترمولومینسانس نانوذرات در دمای پایتتری ظاهر می شود. شکل ۳ منحنی تابش ترمولومینسانس نانوذرات بریلیم اکسید سنتز شده و بریلیم اکسید حجیم پرتودهی شده در دو دز ۵۰۰ و ۱۰۰۰ گری را نشان می دهد.



شکل ۳. منحنی تابش ترمولومینسانس نانوذرات BeO سنتز شده و BeO حجیم (Bulk) پرتودهی شده در دو دز ۵۰۰ و ۱۰۰۰ گری.

منحنی دز-پاسخ

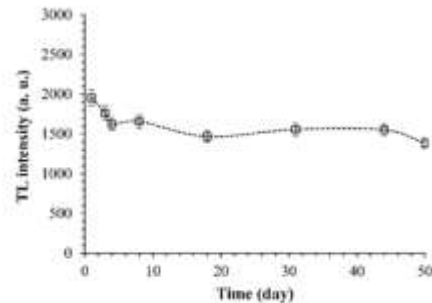
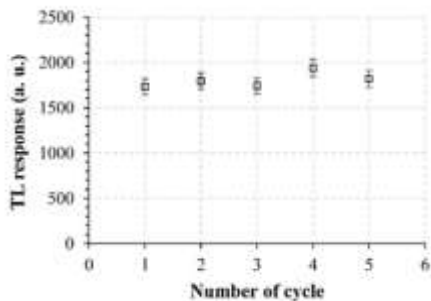
یکی از عواملی که سبب می شود یک ماده برای اهداف دزیمتری مناسب باشد خطی بودن پاسخ ترمولومینسانس آن به ازای دزهای مختلف است. شکل ۴ (چپ) پاسخ ترمولومینسانس نانوذرات تولید شده به ازای دزهای مختلف را نشان می دهد. شدت پاسخ ترمولومینسانس نانوذرات بریلیم اکسید سنتز شده از محدوده ۰/۱ میلی گری تا ۱ کیلوگری، که در این آزمایشها بررسی شده‌اند، دارای پاسخ ترمولومینسانس نسبتاً خطی است. شکل ۴ (راست) نمودار گسترده ناحیه دز پایین در نمودار دز-پاسخ است که جهت وضوح بیشتر در این ناحیه ارائه شده است.



شکل ۴. نمودار پاسخ ترمولومینسانس نانوذرات بریلیم اکسید در دزهای بالا ۴ (چپ) و پایین ۴ (راست).

بررسی محو شدگی پاسخ

شکل ۵ نمودار محو شدگی پاسخ نانوذرات بریلیم اکسید را در مدت زمان ۵۰ روز نشان می‌دهد. محو شدگی پاسخ در چهار روز اول پس از انجام پرتودهی حدود ۱۴ درصد و تا روز پنجاه ام، مقدار محو شدگی به ۲۴ درصد می‌رسد. بنابراین این در صورت استفاده از این دزیمتر توصیه می‌شود قرائت در زمان‌های هرچه نزدیکتر به زمان پرتودهی انجام شود. این مقدار در مقایسه با برخی دزیمترهای تجاری مناسب و نوید بخش است. یکی از دلایل محو شدگی کوچک این دزیمتر احتمالاً عدم وجود قله‌های دمایی پایین و متعاقباً عدم آزاد شدن الکترون‌های گیر افتاده در دمایی پایین اتاق باشد. هر پاسخ از میانگین ۵ قرائت حاصل شده است.



شکل ۶. تکرارپذیری پاسخ نانوذرات بریلیم اکسید در پنج تست مکرر شامل آنیلینگ، پرتودهی و قرائت.

شکل ۷. نمودار پاسخ ترمولومینسانس نانوذرات بریلیم اکسید (پرتو دیده با دز ۱۰۰ گری) تا ۵۰ روز متوالی پس از پرتودهی.



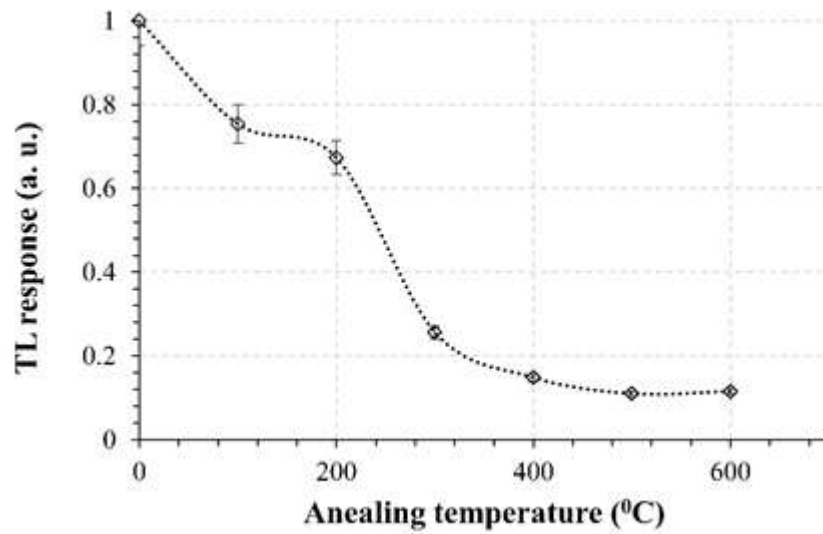
تکرار پذیری

امکان استفاده از یک دزیمتر ترمولومینسانس و دریافت پاسخ یکسان یا نزدیک به هم، برای دفعات پی در پی، یکی از خصوصیات اصلی دزیمترهای مناسب، برای انجام فعالیت‌های دزیمتری می‌باشد. شکل ۶ وضعیت تکرارپذیری پاسخ این نانوذرات را پس از ۵ مرتبه آنیل شدن، پرتودهی و قرائت نشان می‌دهد. این تست‌ها با پرتودهی در دز ۱۰۰ گری و آنیل شدن تا دمای 600°C تکرار شد. بزرگترین مقدار خطای نسبی، در این پنج تست $13/80\%$ بدست آمد که برای این دزیمتر مناسب بنظر می‌رسد. همواره باید توجه داشت که با توجه به امکانات دستگاه قرائتگر که امکان ثبت پیک‌های بالاتر از 400°C را فراهم نمی‌کرد دزهای بالا جهت انجام این تست‌ها انتخاب شده‌اند تا اطلاعات معتبرتری حاصل شود و ممکن است نتایج در دزهای پایین مقادیری متفاوت باشد.

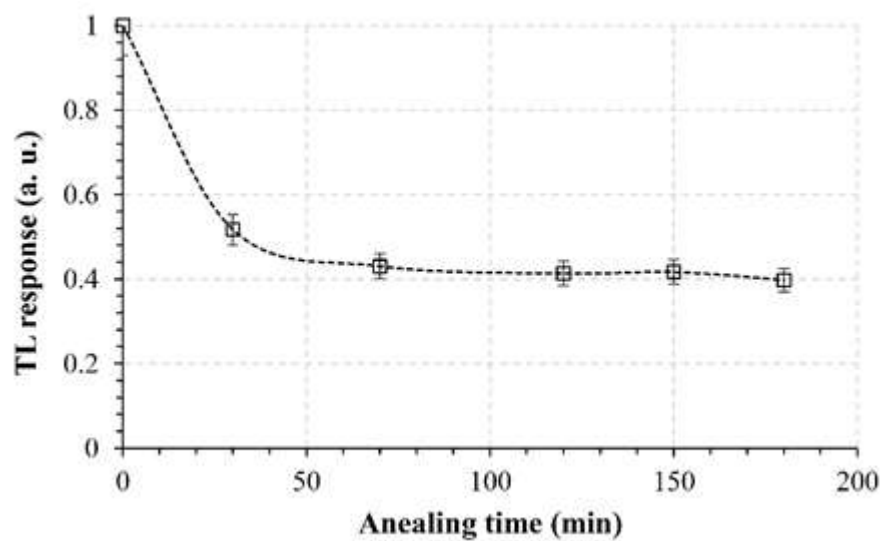
تعیین درجه حرارت و مدت زمان آنیل شدن

تخلیه کامل تله‌هایی که در اثر قرارگیری در معرض تابش ایجاد شده‌اند ممکن است با قرارگیری در برخی دماهای انتخابی برای قرائت پاک نشوند و تنها با آنیل شدن در دمای بالا اتفاق بیفتد. رفتار آنیل حرارتی پودر BeO به این شکل بررسی شد. با حرارت دهی نمونه‌های تابش دیده BeO تا یک دمای مشخص و کنترل سیگنال TL باقی مانده پس از خنک شدن تا دمای اتاق انجام گرفت. دماهای تنظیم شده برای انجام آزمایش از دمای 100°C تا 600°C با فواصل 100°C انتخاب شدند. شدت سیگنال TL بعد از آنیل شدن به مدت ۶۰ دقیقه در هر یک از دماهای مورد آزمایش ثبت شد (شکل ۷). به نظر می‌رسد دماهای بالای 500°C دماهای بهینه برای تکامل آنیلینگ این پودر باشد. بیشترین کاهش شدت ترمولومینسانس در دمای بین 200°C و 400°C اتفاق افتاده است که حدود 85% می‌باشد.

پس از دریافت حداقل دما برای آنیلینگ، جهت یافتن کوتاه‌ترین زمان آنیل شدن تعدادی نمونه با دز ۱۰۰ گری پرتودهی و در دمای 500°C درجه سانتیگراد به مدت ۳۰، ۷۰، ۱۲۰، ۱۵۰ و ۱۸۰ دقیقه آنیل شده و سپس قرائت شدند. نتایج در نموداری که شدت نسبی پاسخ TL را بر زمان آنیل شدن نشان می‌دهد ترسیم شد (شکل ۸). به این ترتیب زمان مناسب آنیل شدن در 500°C برای تخلیه کامل تله‌ها حداقل ۷۰ دقیقه می‌باشد. آزاد شدن بیشتر الکترون‌ها در ۳۰ دقیقه اول آنیل رخ می‌دهد اما جهت اجرای دقیق‌ترین اندازه‌گیری زمانی بیش از ۷۰ دقیقه مناسب تر است.



شکل ۷. نمودار تغییرات پاسخ ترمولومینسانس نانوذرات بریلیم اکسید نسبت به دمای آنیل حرارتی.



شکل ۸. نمودار تغییرات پاسخ ترمولومینسانس نانوذرات بریلیم اکسید نسبت به زمان آنیل حرارتی در دمای ۵۰۰ درجه سانتیگراد.



نتیجه گیری

نانوذرات کلسینه شده در 800°C محصولی یونیفرم و دارای مورفولوژی بیضوی بوده و دارای اندازه ذرات در حدود 35 نانومتر است. منحنی درخشش این ماده دو پیک قابل اعتنا در دماهای $166/27^{\circ}\text{C}$ و $269/43^{\circ}\text{C}$ نشان داد. با کاهش دز به محدوده دز پایین، جابجایی پیک به دماهای بالاتر از 400°C اتفاق افتاد. همچنین شدت منحنی تابش ترمولومینسانس نمونه های بررسی شده با افزایش دز جذبی تا 1000 گری به صورت خطی و در دزهای کوچکتر از $0/1$ میلی گری به صورت تقریباً خطی افزایش یافت. بررسی های متنوع دیگری نیز بر روی این محصول انجام شد. بررسی محو شدگی پاسخ، در پایش 50 روزه ی شدت پاسخ، نشان داد که در چهار روز اول پس از انجام پرتودهی حدود 14% و تا روز 50 ام، مقدار محو شدگی به 24% می رسد که این مقادیر قابل قبول ارزیابی شد. توصیه می شود قرائت در زمان های نزدیکتر به زمان پرتودهی انجام شود. امکان استفاده مکرر با انجام آزمایشات تکرار پذیری در پنج سیکل بررسی شد. بزرگترین مقدار خطای نسبی، در این پنج توالی $13/80\%$ می باشد. با توجه به نتایج آزمایشاتی که جهت شناخت حداقل دما و زمان برای آنیل شدن طراحی شدند، می توان پیشنهاد کرد که آنیل شدن اکسید بریلیم حداقل زمان 70 دقیقه در دمای 500°C را نیاز دارد.

مراجع

- [¹] Yamashita, T., Nada, N., Onishi, H. and Kitamura, S. (1968), (1971). In: porc. 2nd Conf. on Luminescence Dosimetry, Gatlinburg, CONF 680920, p. 4 ; health Phys., 21, 295.
- [¹] Azorin, J. and Gatierez, A. (1986). health Phys., 56, 551.
- [¹] Zahedifar, M., Mehrabi, M., Modarres, M., Harooni, S. (2012) JNS 1, 199.
- [¹] Drisoll, C.M:H., Fisher, E.S., Furetta. C., Padovani, R., Richards, D.J. and Wall. B.F. (1984) .Radiat. Port. Dosim. 6, 305.
- [⁷] Bahbout, S. and Furetta, C. (1983). Radiat. Port. Dosim. 4, 43.