



بررسی ویژگی‌های دزیمتر ترمولومینسانس لیتیوم فلوراید آلائیده با استرانسیوم و

دیسپروسیم ساخته شده به روش ذوب

خلیفه شوشتری^۱، مقداد^۱ - صادقی، احسان^{۱*} - زاهدی فر، مصطفی^۲

(۱) دانشگاه کاشان، دانشکده فیزیک، گروه فیزیک هسته‌ای

(۲) دانشگاه کاشان، پژوهشکده‌ی علوم و فناوری نانو، گروه نانو فیزیک

چکیده:

ماده لیتیوم فلوراید با افزودن ناخالصی‌های استرانسیوم و دیسپروسیم جهت بکارگیری در دزیمتری با استفاده از روش ترمولومینسانس به روش ذوب ساخته شد. برخی خصوصیات ترمولومینسانس این ماده با توجه به غلظت‌های ناخالصی‌ها و روش تابکاری بهینه در این تحقیق بررسی شده است. با مقایسه منحنی‌های درخشش $LiF: Sr, Dy$ با LiF خالص، نقش ناخالصی‌ها بررسی شد. حساسیت ترمولومینسانس نمونه جدید با دزیمترهای تجاری استاندارد مقایسه گردید و منحنی تابش ترمولومینسانس بدست آمده با استفاده از برنامه کامپیوتری برازش شده و پارامترهای سینتیک با استفاده از مدل مرتبه عام بدست آمد.

کلمات کلیدی: ترمولومینسانس، دزیمتری، روش ذوب، گاما، لیتیوم فلوراید.

Investigation of thermoluminescence dosimeter of Lithium Fluoride doped with Strontium and Dysprosium using melting method

M. Khalifeh Shoushtari¹, E. Sadeghi^{1,2*}, M. Zahedifar^{1,2}

¹Faculty of Physics, Kashan University, Esfahan, Iran.

²Institute of Nanoscience and Nanotechnology, University of Kashan, Kashan

Abstract

Lithium fluoride doped with Strontium and Dysprosium was fabricated using melting method as thermoluminescence (TL) dosimeter. Some TL properties of prepared samples with optimal concentrations of impurities and annealing regime were investigated. The role of dopants in TL response was investigated using comparison of TL glow curves of $LiF: Sr, Dy$ dosimeter. TL sensitivity of this material was compared with commercial dosimeter of TLD-100 and GR-200. The TL glow curve was de-convolved to identify TL kinetic parameters using general order kinetic model.

Keywords: Thermoluminescence, dosimetry, Melting method, Gamma, Lithium fluoride.



مقدمه :

ترمولومینسانس یکی از روش‌های شناخته شده در کاربردهای دزیمتری است به گونه ای که از دیرباز مورد توجه محققان این زمینه می باشد. جهت استفاده از این پدیده در دزیمتری انواع پرتوها مواد مختلفی ساخته و بررسی شده اند که هر کدام از آنها در شاخه خاصی از دزیمتری همچون گاما دزیمتری، نوترون دزیمتری، دزیمتری فردی، دزیمتری محیطی و ... دارای کاربردهای منحصر به فرد هستند. در این میان LiF یکی از بلورهایی است که بسیار مورد توجه است. عدد اتمی مؤثر این ماده بسیار به عدد اتمی مؤثر بافت زنده نزدیک است [۱] و به همین دلیل از نظر جذب دز شبیه به بدن عمل می کند. این عامل بلور لیتیوم فلوراید را کاندیدای مناسبی جهت دزیمتری فردی کرده است. تا کنون بلورهای لیتیوم فلوراید که با ناخالصی‌های مختلف جهت استفاده در دزیمتری به روش ترمولومینسانس (TL) آلایده شده اند، در گستره وسیعی مورد مطالعه قرار گرفته اند. از جمله دزیمترهای ترمولومینسانس که امروزه در زمینه فردی و پزشکی در سطح بین المللی مورد استفاده قرار می گیرند LiF:Mg,Cu,P و LiF:Mg,Ti می باشند. لیتیوم فلوراید به صورت خالص خاصیت TL از خود نشان می دهد [۲]. در این تحقیق از این بلور بعنوان ماده میزبان و از ناخالصی‌های استرانسیوم و دیسپروسیوم جهت ساخت و بررسی خواص ترمولومینسانس دزیمتر LiF:Sr,Dy استفاده شد.

روش کار :

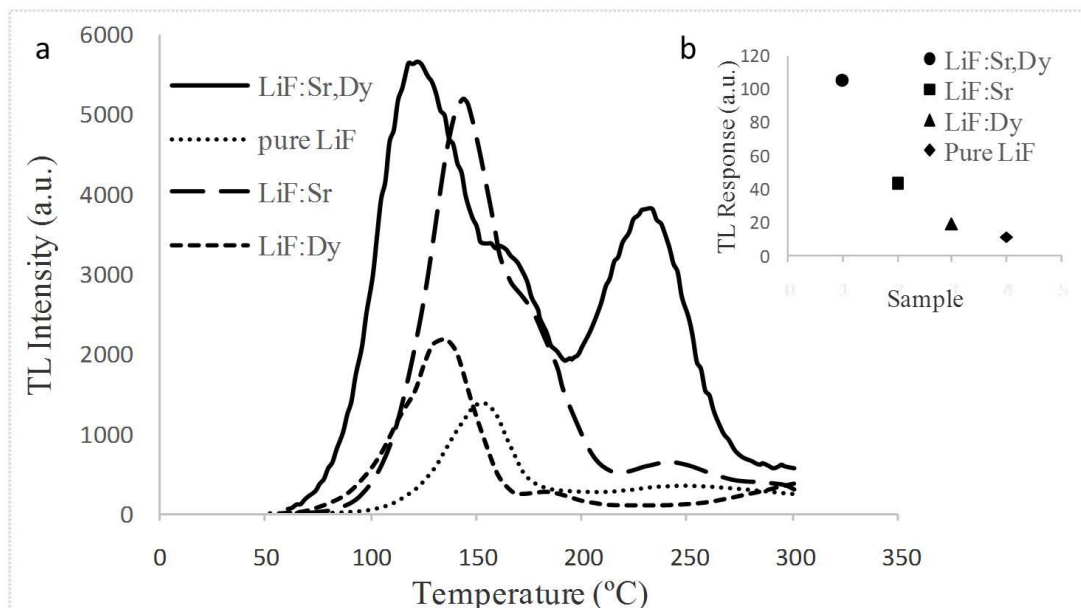
خواص ترمولومینسانس مواد به نوع و غلظت ناخالصی‌ها به شدت وابسته می باشد [۳]. در این تحقیق آلاینه‌های مورد استفاده بصورت ترکیب‌های نیترات استرانسیوم با درصد خلوص ۹۹/۹۵٪ و وزن مولی $458/09 \text{ g/mol}$ و نیز نیترات دیسپروسیوم با درصد خلوص ۹۹/۹٪ و وزن مولی $211/63 \text{ g/mol}$ بکار گرفته شده است. مقدار بهینه ای که حساسیت قابل توجهی را برای ما ایجاد می کند، برابر ۰/۵ مول درصد استرانسیوم و ۰/۱ مول درصد دیسپروسیوم از مقدار ماده استفاده شده میزبان یا همان LiF با درصد خلوص ۹۹/۹۹٪ تهیه شده از شرکت MERCK می باشد. پس از انتخاب مقدار مناسب از نمونه‌ها آنها را با یکدیگر مخلوط می نماییم. نمونه‌ها را داخل یک بوتله پلاتینی گذاشته و بوتله را در یک راکتور کوارتزی قرار می دهیم تا برای مرحله ذوب آماده شود. برای ساخت دزیمترهای لیتیوم فلوراید بر اساس نتایج تحقیقاتی که تا کنون انجام گرفته حضور شار نیتروژن در طول مرحله ذوب و سردسازی بسیار ضروری است بگونه ای که عدم حضور این گاز منجر به کاهش فوق العاده حساسیت ماده ترمولومینسانس می شود [۴]. راکتور را داخل کوره قرار داده و با اعمال شار نیتروژن به مدت نیم ساعت نمونه‌ها در دمای 1000°C قرار می گیرند تا ذوب شده و ناخالصی‌ها از این طریق وارد ساختار بلوری ماده شوند. پس از گذشت این زمان راکتور را از کوره خارج می نماییم پس از بیرون آوردن نمونه از کوره آن را با استفاده از هاونگ پودر و مخلوط کرده تا از یکنواختی حضور ناخالصی در سراسر ماده مطمئن گردیم. به جهت مقایسه نقش ناخالصی‌ها در شکل



منحنی درخشش و نیز میزان تغییرات در حساسیت ماده، نمونه های LiF با ناخالصی های Sr و Dy به طور جداگانه با درصدهای بهینه ای که بدست آمده و به روشی که در بالا اشاره شد، ساخته شدند. قبل از انجام پرتو دهی، نیاز به انجام فرآیند تابکاری بر روی نمونه ها جهت پایداری ساختار گیراندازها می باشد. در این آزمایش، رژیم گرمایی مورد استفاده برای انجام این فرآیند به اینصورت است که نمونه را در دمای 300°C به مدت ۱۵ دقیقه قرار می دهیم سپس برای عملیات سرد سازی که بعد از تابکاری لازم است، نمونه را بر روی یک صفحه استیل منجمد قرار داده تا اینکه به سرعت تا دمای اتاق سرد شود. پس از اقدامات فوق نمونه برای پرتو دهی آماده می گردد. جهت پرتو دهی نمونه ها تابش گاما با استفاده از چشمه ^{60}Co واقع در پژوهشکده تحقیقات هسته ای کرج استفاده شد. سپس با استفاده از دستگاه TLD reader مدل 4500 Harshaw نمونه تا دمای 300°C با نرخ 2°C/s قرائت شد. پس از قرائت نمونه ها نتیجه را می توان به صورت یک منحنی شدت بر حسب دما (منحنی درخشش) یا همان پاسخ دز مشاهده نمود. از آنجایی که مساحت زیر این منحنی و نیز شدت قله اصلی با میزان دز جذبی توسط ماده کاملاً متناسب است [۵]، لذا می توان از این مقادیر برای مقایسه دزیمترها استفاده کرد.

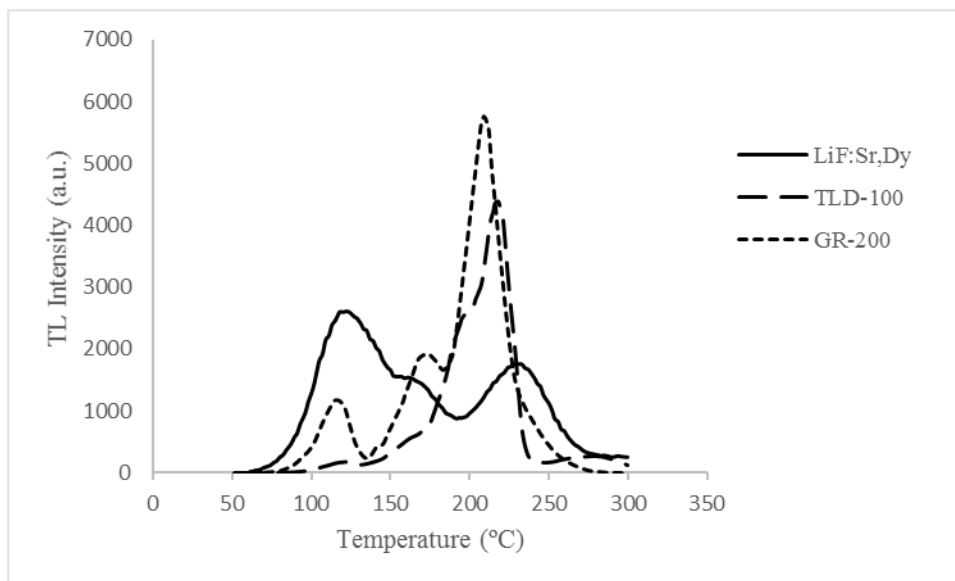
نتایج :

در مرحله اول با مقایسه شکل منحنی LiF و LiF: Sr, Dy خالص (به صورت پودر ذوب نشده) می توان نقش ناخالصی ها را در فرآیند ترمولومینسانس دریافت. مطابق شکل ۱ شدت قله های مربوط به LiF خالص به ترتیب برابر 1374°C واحد در دمای 152°C و 344°C واحد در دمای 248°C می باشد در حالی که برای ماده دزیمتری جدید LiF: Sr, Dy شدت قله ها به ترتیب برابر با 5640°C واحد در دمای 118°C ، 3345°C واحد در دمای 161°C و 3808°C واحد در دمای 233°C می باشد. همانطور که قابل مشاهده است، افزودن ناخالصی موجب افزایش شدت قله های منحنی درخشش شده به ویژه قله اصلی دزیمتری (قله سوم) که به میزان بیش از ۱۰ برابر نسبت به قله ۲ در LiF افزایش یافته است. این نکته نشان می دهد که ناخالصی های افزوده شده نقش اساسی در ایجاد مراکز گیراندازی ایفا می کنند. منحنی مربوط به LiF: Sr, Dy جهت مقایسه بهتر در عامل $0/5$ ضرب شده است. از طرف دیگر مطابق شکل ۱ منحنی های مربوط به ناخالصی Sr, Dy و Sr تقریباً دارای شکل های مشابهی است که دلیلی بر اینست که ناخالصی استرانسیوم می تواند بعنوان آلاینده اصلی در ایجاد مراکز گیراندازی برای این دزیمتر در نظر گرفته شود.



شکل شماره (۱) (a) منحنی های درخشش برای مواد LiF و LiF:Sr,Dy , LiF:Dy , LiF:Sr برای مقایسه بهتر در عامل ۵/۰ ضرب شده است. (b) مقایسه پاسخ ترمولومینسانس منحنی های نمودار a.

شکل ۲ مقایسه ای بین نمونه پیشنهادی و دزیترهای تجاری را براساس منحنی های پاسخ دز نشان می دهد (نمودار GR-200 در عامل ۱/۰ ضرب شده است). تمام این نمونه ها توسط چشمه ^{60}Co با مقدار دز یکسان Gy ۱۰ پرتو دهی شده اند. قله اصلی در منحنی درخشش مربوط به LiF:Sr,Dy در دمای 233°C ایجاد می شود. لذا می توان انتظار داشت که محو شدگی قله اصلی نمونه ساخته شده کم و قابل قبول باشد. اما برای قله های دمایی پایین محو شدگی دزیتر پیشنهادی، بیشتر از قله اصلی پیش بینی می شود. در جدول ۱ برخی خصوصیات مواد LiF:Sr,Dy ، TLD-100 و GR-200 آورده شده است. همانطور که مشاهده می شود حساسیت نمونه پیشنهادی نسبت به نمونه های تجاری مذکور بترتیب برابر ۴/۰ و ۳/۰ می باشد.



شکل شماره (۲) : مقایسه بین پاسخ های دز نمونه های تجاری و نمونه پیشنهادی (منحنی GR-200 در عامل ۰/۱ ضرب شده اند).

با استفاده از مدل سینتیک مرتبه عام، پارامترهای سینتیک ماده مورد نظر از جمله مرتبه سینتیک و انرژی فعال-سازی برای هر قله از منحنی درخشش بدست آمد. با استفاده از برنامه کامپیوتری که بر اساس الگوریتم Levenberg-Marquart نوشته شده است، برازش منحنی درخشش مربوط به ماده LiF:Sr,Dy انجام گرفت. مبنای محاسبه به این صورت است که از شدت پیشینه و دمای مربوط به آن که کمیت‌های تجربی می باشند، در معادله سینتیک مرتبه عام به صورت رابطه (۱) است [۶]:

$$I(T) = I_m b^{b-1} \exp\left(\frac{E(T-T_m)}{kTT_m}\right) \times \quad (1)$$

$$\left\{ \frac{T^2}{T_m^2} (b-1) \left(1 - \frac{2kT}{E}\right) \exp\left(\frac{E(T-T_m)}{kTT_m}\right) + 1 + (b-1) \frac{2kT_m}{E} \right\}^{-b}$$

در این معادله E انرژی فعالسازی برحسب الکترون ولت ، T دما بر حسب کلوین و k ثابت بولتزمن می باشد. برای تعیین میزان انطباق منحنی ترمولومینسانس تئوری و تجربی از رابطه FOM به صورت رابطه (۲) استفاده شد. که اگر مقدار آن کمتر از ۲/۵ باشد بین منحنی های تجربی و تئوری انطباق قابل قبولی برقرار خواهد بود.

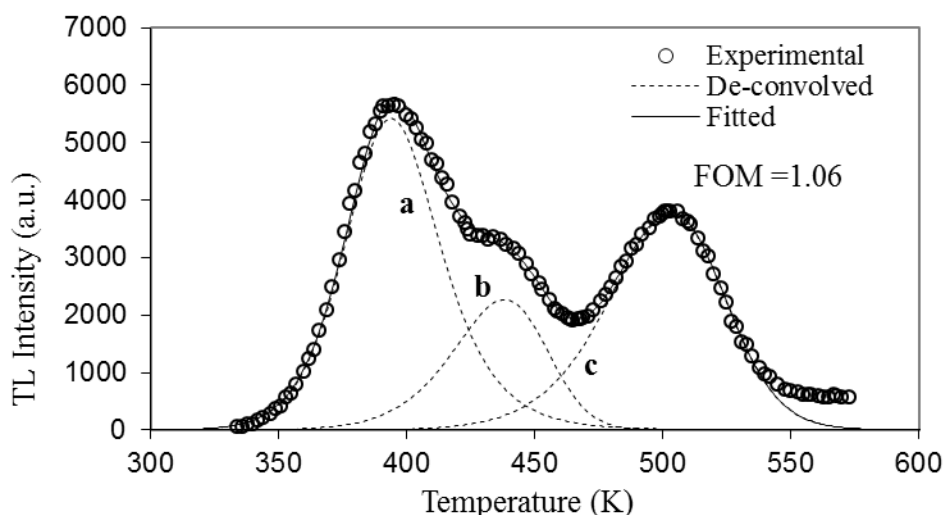
$$FOM = \sum_{j=1}^{j_f} \frac{100[y_i - y(x_i)]}{A} \quad (2)$$

که در آن y_i مربوط به داده های تجربی است و $y(x_i)$ بهترین مقداریست که از طریق این انطباق به دست می آید [۷].

شکل شماره ۳ تعداد ۳ قله را برای منحنی درخشش LiF:Sr,Dy که با استفاده از روش فوق در برنامه کامپیوتری بدست آمده اند، نشان می دهد. در جدول ۱ نیز پارامترهای سینتیک مربوطه آورده شده است.

جدول (۱) : پارامترهای سینتیک نمونه LiF:Sr,Dy با استفاده از مدل مرتبه عام.

قله	b	E(eV)	T _m (K)	I _m (a.u.)
a	۲/۰۰	۱/۰۲	۳۹۴	۵۴۱۸
b	۱/۲۲	۱/۰۰	۴۳۸	۲۲۶۶
c	۱/۳۳	۱/۱۰	۵۰۳	۳۷۸۰



شکل شماره (۳) : قله های منحنی LiF:Sr,Dy برآزش شده با برنامه کامپیوتری که تعداد ۳ قله را نشان می دهد.

بحث و نتیجه گیری :

نمونه لیتیم فلوراید بصورت خالص، با ناخاصی Sr و Dy به طور جداگانه و نیز با ناخاصی های Sr,Dy به طور همزمان به روش ذوب ساخته شد. نتایج بدست آمده افزایش محسوس حساسیت ترمولومینسانس نمونه با ناخاصی های Sr,Dy را در مقایسه با دو نمونه دیگر نشان میدهد. دزیمتر LiF:Sr,Dy دارای ۳ قله همپوش در منحنی درخشش خود می باشد. با توجه به اینکه ماده میزبان استفاده شده لیتیم فلوراید بوده و



حساسیت ماده مورد مطالعه نسبت به نمونه تجاری TLD-100 دارای مقدار قابل قبولی است و همچنین با در نظر گرفتن خواص ترمولومینسانس ماده پیشنهادی، می توان از آن در دزیمتری فردی استفاده نمود.

سپاسگزاری

از مساعدت و همیاری دانشگاه کاشان در انجام این پژوهش کمال تشکر و قدردانی را داریم.

مراجع :

- [1] C. Furetta, Handbook of thermoluminescence, World Science, Singapore, 2003.
- [2] D.R.S. Riberio, D.N. Souza, A.F. Maia, Applicability of pure LiF in dosimetry, Radiation Measurements, 43, 1132-1134, 2008.
- [3] A.J.J. Bos, Theory of thermoluminescence, Radiation Measurements, 41, 45-56, 2007.
- [4] Z. Zha, S. Wang, W. Shen, J. Zhu and G. Cai, Preparation and characteristics of LiF:Mg,Cu,P thermoluminescent material, Radiation Protection Dosimetry, 47, 111-118, 1993.
- [5] M. Zahedifar, E. Sadeghi, S. Harooni, Thermoluminescence characteristics of the novel CaF₂:Dy nanoparticles prepared by using the hydrothermal method Nuclear Instruments and Methods B, 291, 65-72, 2012.
- [6] J.J. Kitis, J.W.N. Tuyn, "Thermoluminescence glow curve deconvolution function for first, second and general orders of kinetics", Journal of Physics D: Applied Physics, 31, 2636-2641, 1998.
- [7] H.G. Bailan, N.W. Eddy, figure of merit (FOM), an improved criterion over the normalized Chisquared test for assessing goodness-of-fit of gamma-ray spectra peaks, Nuclear Instruments and Methods B, 145, 389-393, 1997.