



بررسی اثر تابش نوترون سریع بر توزیع حفره‌های نانو پودرهای فریت نیکل با استفاده از طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون (PALS)

حصاری پور، سجاد^(۱) - عسگریان، سید مرتضی^(۱) - صادقیان، حمیدرضا^(۱) - کارگر، زهره^(۱)

^۱ بخش فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شیراز، شیراز، ایران

چکیده:

نانو پودر فریت نیکل به روش سل-ژل تهیه و در دمای ۵۰۰ درجه سانتی گراد پخت داده شد. طیف XRD نشان دهنده‌ی تشکیل نمونه‌ی تکفاز با اندازه بلورک‌هایی در ابعاد نانومتر می‌باشد. نمونه نانو پودر به مدت یک، دو و سه هفته در معرض تابش نوترون‌های سریع با دوز 125 μSv/h قرار گرفت. اندازه‌گیری‌های طیف طول عمر نابودی پوزیترون از نمونه‌های قبل و بعد از پرتودهی با نوترون نشان می‌دهند که تابش نوترون در مدت یک هفته و دو هفته باعث ایجاد حفره‌های کوچک زیاد در این نانو پودر می‌شود. افزایش مدت تابش نوترون به نمونه‌های در طی سه هفته باعث ایجاد حفره‌های بزرگ با چگالی کمتر می‌شود. این حفره‌های بزرگ به یکی شدن و اتصال حفره‌های کوچک ایجاد شده در طی دو هفته تابش دهی نسبت داده شد.

کلمات کلیدی: سل-ژل، طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون، تابش دهی، نوترون سریع، حفره

Investigation of fast neutron radiation effect on the vacancy distribution of nickel ferrite nanopowders using Positron Annihilation Lifetime Spectrometry (PALS)

Hasari pour, Sajjad¹; Asgarian, Seyed Morteza¹; Sadeghian, Hamidreza¹; Kargar, Zohreh¹

¹ Physics Department, College of Science, Shiraz University, Shiraz, Iran

Abstract:

Nickel ferrite nanopowder was prepared by the sol-gel method and was sintered at 500 °C temperature. XRD spectrum of the sample shows that single phase of the sample is formed and crystallite size of the sample is in nanometer dimension. The sample was exposed to fast neutron dose of 125 μSv/h for one, two and three weeks. The measurements of positron annihilation lifetime spectrum from samples before and after neutron irradiation show that neutron a small cavity is formed in the one and the two weeks irradiated samples. Increasing the time of neutron irradiation to the samples to three weeks produces large, less dense vacancies. These large vacancies were attributed to the unification and attachment of small vacancies created within the first two weeks of irradiation

Keywords: sol-gel, positron annihilation lifetime spectroscopy, irradiation, fast neutron, vacancy

مقدمه:

پرتودهی فریت‌ها ابزاری قدرتمند برای افزایش عیوب و تغییر در ویژگی‌های فریت‌ها می‌باشد. انواع مختلفی از تابش مانند نوترون‌های سریع، یون‌های پرانرژی و پرتوهای گاما برای مطالعه‌ی اثر تابش بر روی



ویژگی‌های فریت‌های با ترکیبات مختلف به کار برده شده‌اند [۱]. تابش، عیوب را در ماده ایجاد می‌کند و در طی زمان این عیوب حرکت کرده و یکی می‌شوند و تشکیل تپه‌ی جاها، حباب‌ها و حلقه‌های ناجابه‌جایی را می‌دهند. همه‌ی این موارد در استحکام و کارایی مواد تاثیر می‌گذارند. اثرات تابش بر ساختار مواد نه تنها در طرح‌های شکافت و همجوشی مهم هستند بلکه در اجزای سوخت هسته‌ای و در مواد به کار برده شده برای ذخیره‌سازی طولانی مدت ضایعات هسته‌ای هم مهم می‌باشند [۲].

فریت نیکل جزء دسته فریت‌های نرم از لحاظ مغناطیسی است که به دلیل مقاومت الکتریکی بالا و وادارندگی مغناطیسی پایین در هسته‌های ترانسفورماتورها، وسایل ارتباطی و ژنراتورها مورد استفاده قرار می‌گیرد [۳ و ۴]. فریت نیکل دارای شکل مکعبی و ساختار FCC است [۵]. تکنیک‌های ساخت زیادی از قبیل روش سل-ژل [۶] برای بدست آوردن ذره‌های بلوری خالص فریت نیکل با ابعاد نانومتر به کار برده شده است. ما روش سل-ژل را به دلیل ویژگی‌هایی مانند تولید ذرات همگن با اندازه‌ی بسیار ریز و خلوص بالا در زمان نسبتاً کوتاه و کنترل دقیق عنصرسنجی در تولید ماده‌ی نهایی به کار گرفته‌ایم.

توزیع عیوب نقشی بارز در تغییر ویژگی‌های فریت‌ها بر عهده دارد. یکی از تکنیک‌های قدرتمند برای اندازه‌گیری چگالی و نوع عیوب در انواع گوناگونی از مواد، طیف سنجی طول‌عمر نابودی پوزیترون می‌باشد. این تکنیک همچنین می‌تواند برای مطالعه‌ی چگالی الکترونی و تعیین ساختار، طبیعت و غلظت عیوب نقطه‌ای و گسترده در فریت‌ها به کار برده شود. همچنین عیوب القاء شده و تغییرها در چگالی الکترونی و اندازه‌ی دانه بر اثر پرتودهی می‌تواند به طور دقیق با این تکنیک تحلیل شوند [۱]. هنگامی که پوزیترون‌ها وارد نمونه می‌شوند، بعد از انجام فرایندهای گرمایی شدن و پخش با یکی از الکترون‌های درون ماده نابود می‌شوند. مدت زمانی که پوزیترون درون ماده صرف می‌کند تا نابود شود برابر با طول عمر پوزیترون است که تابعی از چگالی الکترونی در محل نابودی می‌باشد و به صورت رابطه‌ی زیر داده می‌شود [۷]:

$$\lambda = \frac{1}{\tau} = \pi r_0^2 c \int |\psi^+|^2 n_-(r) \gamma dr \quad (1)$$

که λ آهنگ نابودی پوزیترون، τ طول‌عمر پوزیترون، r_0 شعاع کلاسیکی الکترون، c سرعت نور، r بردار موقعیت الکترون، ψ^+ تابع موج پوزیترون، $n_-(r)$ چگالی الکترونی و γ تابع همبستگی الکترونی است که بیان‌کننده‌ی افزایش در چگالی الکترونی به دلیل برهم‌کنش کولنی بین یک الکترون و پوزیترون است و به صورت زیر نشان داده می‌شود [۷]:

$$\gamma = \gamma[n_-(r)] = 1 + \frac{\Delta n_-}{n_-} \quad (2)$$

با توجه به رابطه‌ی (۱)، رابطه‌ی بین آهنگ نابودی پوزیترون و چگالی الکترونی عکس هم می‌باشد. از آنجا که درون نقص‌های موجود در نمونه‌های جامد چگالی الکترونی کم‌تر از حالت‌های بدون نقص است، می‌توان نتیجه گرفت که طول‌عمر پوزیترون در نقص‌ها بیشتر از قسمت‌های بدون نقص ماده است. در طیف سنجی



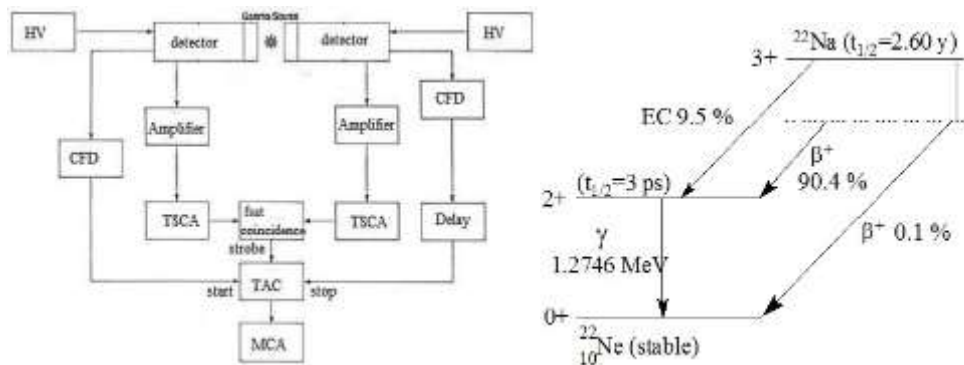
طول عمر نابودی پوزیترون، طول عمر نابودی پوزیترون از اختلاف زمانی بین گسیل گامای 1274 keV تولید شده تقریباً همزمان با گسیل پوزیترون در ایزوتوپ ^{22}Na (چشمه‌ی تولید پوزیترون) و یکی از گاماها 1274 keV حاصل از نابودی زوج الکترون-پوزیترون بدست می‌آید. با تحلیل طیف حاصل از نابودی پوزیترون می‌توان به ساختار عیوب در مواد پی برد.

بخش تجربی:

برای تهیه‌ی نانوپودر فریت نیکل (NiFe_2O_4)، مواد اولیه شامل نیترات نیکل $[\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}]$ و نیترات آهن $[\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}]$ به نسبت‌های استوکیومتری به همراه اسید سیتریک $[\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}]$ در 300 میلی لیتر آب مقطر حل شدند. محلول حاصل با همزن مغناطیسی در طی حرارت‌دهی، همزده شد تا به ژل تبدیل گردید. ژل حاصل به مدت 24 ساعت در خشک کن در دمای 100 درجه سانتی گراد قرار داده شد تا خشک شود و در انتها برای تهیه‌ی نانو پودر فریت نیکل در دمای 500 درجه سانتی گراد به مدت 2 ساعت پخت داده شد. به منظور بررسی اثرات تابش نوترون سریع بر نانوپودر فریت نیکل، مقداری از نمونه‌ی تهیه شده به مدت یک، دو و سه هفته در معرض تابش نوترون سریع حاصل از چشمه Am-Be با دوز $125 \mu\text{Sv/h}$ قرار گرفت.

برای اندازه‌گیری طول عمر نابودی پوزیترون از یک مدار همزمانی سریع-کند با رزولوشن زمانی 248 پیکوثانیه برای گاما های چشمه‌ی ^{60}Co استفاده شده است. مدار مورد استفاده برای اندازه‌گیری طول عمر پوزیترون در شکل (۱) -چپ نشان داده شده است. این مدار شامل منبع تغذیه (HV)، دو آشکار ساز پلاستیکی (Detector)، تقویت کننده‌های اسپکتروسکوپی (Amplifire)، تبعیضگرهای کسر ثابت (CFD)، تحلیلگرهای تک کاناله زمانی (TSCA)، مبدل زمان به دامنه (TAC)، دستگاه همزمانی سریع (Fast Coincidence)، تحلیلگر چند کاناله (MCA) و کابل تاخیر (Delay) می باشد. چشمه‌ی پوزیترون مورد استفاده، چشمه‌ی ^{22}Na است که تقریباً همزمان با تابش پوزیترون یک گامای 1274 keV نیز تابش می‌کند. نمایی از واپاشی چشمه‌ی ^{22}Na در شکل (۱) -راست نشان داده شده است. با یکی از آشکار سازها، تابش 1274 keV اندازه‌گیری می‌شود که بدین طریق زمان تولید پوزیترون (Start) به دست می‌آید. زمان نابودی پوزیترون (Stop) هم با اندازه‌گیری گامای نابودی زوج الکترون-پوزیترون، 511 keV توسط آشکار ساز دوم به دست می‌آید. طول عمر پوزیترون با بدست آوردن اختلاف زمانی بین این دو اندازه‌گیری، محاسبه می‌شود. مدار شکل (۱) -چپ شامل یک مدار داخلی و یک مدار خارجی است. مدار داخلی تضمین می‌کند که تنها پالس‌هایی که انرژی‌های 1274 keV و 511 keV دارند، اختلاف زمانی شان اندازه‌گیری شود. مدار خارجی اختلاف زمانی بین پالس‌ها را به دست آورده و تنها برای پالس‌هایی که توسط مدار داخلی تایید شوند، (یعنی انرژی‌شان 1274 keV و 511 keV باشند) ذخیره می‌شود. به این ترتیب طیف طول عمر نابودی پوزیترون به دست می‌آید. چشمه ^{22}Na مورد استفاده دارای اکتیویته‌ی 20 میکروکوری بوده و به منظور ممانعت از آلودگی نمونه‌های مورد اندازه‌گیری، در فویل مایلار و ضخامت $7 \mu\text{m}$ پوشانده شد. برای اینکه مطمئن شویم تمام پوزیترون‌ها در نمونه‌ها نابود

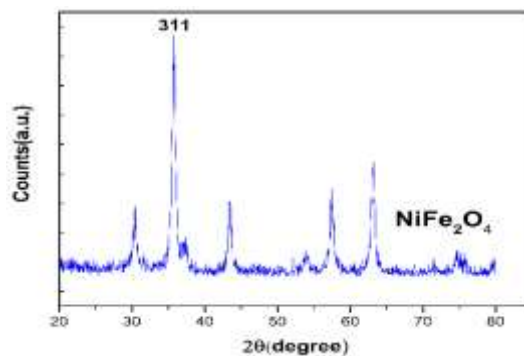
می‌شوند در هر دو طرف چشمه به مقدار کافی از نانوپودر نمونه قرار داده شد. طیف‌های طول عمر نابودی پوزیترون با مقدار شمارش بیش از یک میلیون شمارش در ۱۲ ساعت اندازه‌گیری شد. مولفه‌های طول عمر نابودی پوزیترون و شدت‌های آنها با استفاده از نرم افزار PASCAL از طیف‌های طول عمر پوزیترون به دست می‌آیند. هر طیف طول عمر نابودی پوزیترون نموداری است که شامل زمان‌های نابودی پوزیترون‌های مجزا در ماده است. بعد از برازش این طیف توسط نرم افزار پاسکوال سه مولفه‌ی طول عمر نابودی پوزیترون برحسب پیکوتانیه به ترتیب τ_1 ، τ_2 و τ_3 بدست می‌آیند. همچنین مولفه‌های شدت طول عمر I_1 ، I_2 و I_3 به طور مستقیم به غلظت عیوب مربوط می‌شوند. در واقع مولفه‌های طول عمر نابودی پوزیترون (τ_i) بیان کننده بزرگی ابعاد عیبی است که پوزیترون در آن گیراندازی شده که بر حسب پیکوتانیه بیان می‌شود و شدت‌های (I_i) آن‌ها مربوط به چگالی همان عیب است.



شکل (۱). نمایی از واپاشی چشمه‌ی ^{22}Na (سمت راست) و دیاگرام سیستم طیف سنجی طول عمر نابودی پوزیترون استفاده شده در این پژوهش (سمت چپ).

نتایج و بحث:

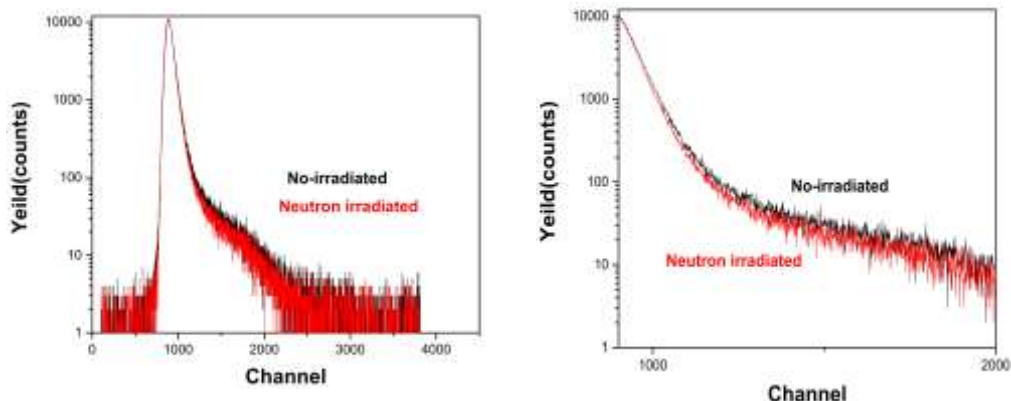
در شکل (۲) طیف XRD نمونه‌ی فریت نیکل تهیه شده نشان داده شده است. همان طور که دیده می‌شود نمونه‌ی تهیه شده تکفاز بوده و فاز ناخالصی در نمونه دیده نمی‌شود. اندازه بلورک نمونه با استفاده از فرمول شرر محاسبه شد که مقدار $33/7$ نانومتر به دست آمد که تایید می‌کند نمونه‌ها نانوپودر هستند.



شکل (۲). طیف پراش پرتو ایکس فریت نیکل تهیه شده.



طیف طول عمر نابودی پوزیترون برای نمونه‌های فریت نیکل خام و فریت نیکل ۳ هفته تابش دیده در شکل (۳) نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می‌شود در قسمت میانی، طیف طول عمر نابودی پوزیترون تغییراتی ایجاد شده است و طیف برای نمونه‌ی فریت نیکل تابش دیده با شیب بیشتری سقوط می‌کند. محور افقی در شکل، شماره‌ی کانال را نشان می‌دهد که بر حسب زمان کالیبره می‌شود، و محور عمودی تعداد شمارش‌ها در هر کانال را نشان می‌دهد. پهنای هر کانال در حدود ۶۰۱ پیکوثانیه می‌باشد. مولفه‌های طول عمر به دست آمده از این نمودارها با استفاده از نرم افزار پاسکوال، معکوس شیب خط‌های مماس شده بر این منحنی‌ها می‌باشند. با استفاده از نرم افزار پاسکوال بر هر منحنی تنها پنج خط مماس می‌شود که دو تای آنها مربوط به چشمه است و سه تای دیگر مربوط به نمونه‌ها می‌باشد. با توجه به اینکه تمام نمونه‌ها در شرایط یکسان از نظر محیطی اندازه‌گیری شده‌اند و همچنین تمام نمونه‌ها پودری هستند و به صورتی در اطراف چشمه ریخته شده‌اند که چشمه را به طور کامل بپوشانند، در نتیجه تغییرات در مولفه‌های طول عمر پوزیترون و شدت‌های مربوط به آنها ناشی از رطوبت و شرایط دمایی یا نحوه‌ی قرارگیری نمونه‌ها نمی‌باشد و تنها به خاطر تابش نوترون به نمونه‌ها خواهد بود.

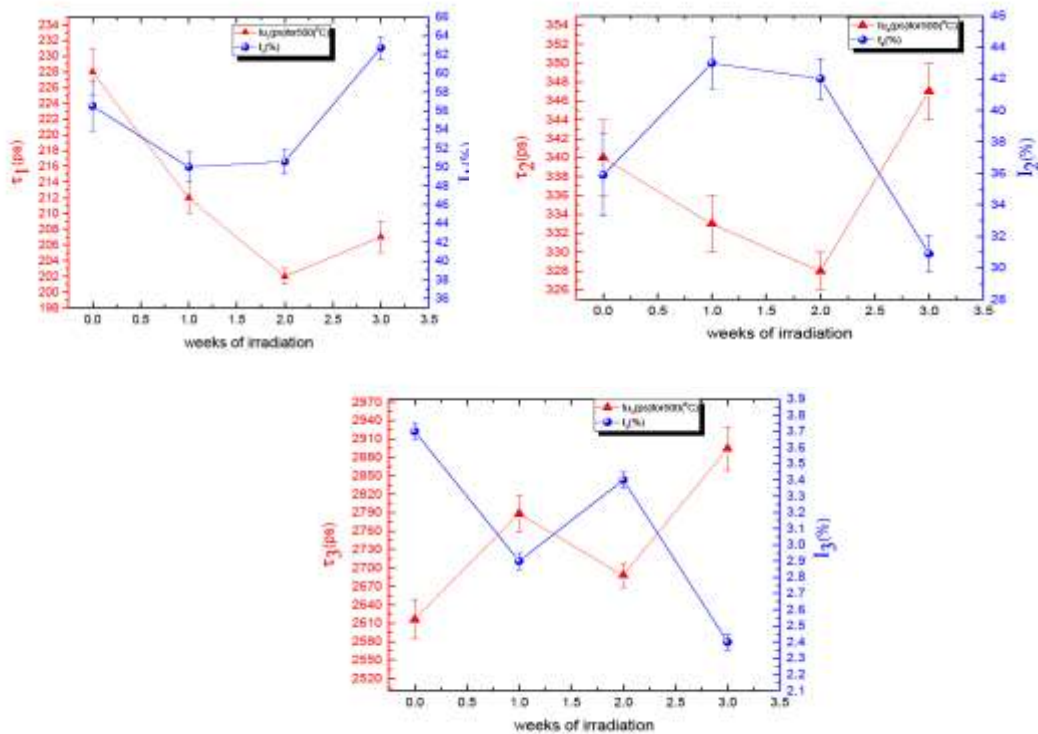


شکل (۳). طیف طول عمر نابودی پوزیترون برای نمونه‌های فریت نیکل خام و فریت نیکل تابش دیده به مدت ۳ هفته (شکل سمت راست بزرگ شده‌ی شکل سمت چپ در بازه‌ی ۹۰۰ تا ۲۰۰۰ کانال می‌باشد).

در شکل‌های (۴) نمودارهای مولفه‌های طول عمر نابودی پوزیترون برای نمونه‌های فریت نیکل تحت تابش نوترون سریع همراه با شدت آنها رسم شده است. محور افقی مدت زمان قرار گرفتن این نمونه‌ها تحت تابش نوترون سریع به مدت صفر هفته (نمونه خام تابش داده نشده)، یک، دو و سه هفته و محورهای عمودی نشان دهنده‌ی مولفه‌های طول عمر نابودی پوزیترون و شدت‌های آنها می‌باشند. مولفه‌ی τ_1 مربوط به نابودی پوزیترون‌ها در قسمت‌های بدون عیب شبکه در نانو پودرهاست. همان طور که دیده می‌شود با تابش نوترون سریع به نمونه، مولفه‌ی τ_1 کاهش پیدا می‌کند. با افزایش مدت زمان تابش دهی به دو هفته این کاهش ادامه



یافته ولی برای سه هفته به مقدار کمی افزایش می‌یابد. چون طبق تغییرات I_2 (در ادامه بحث می‌شود)، چگالی عیوب افزایش پیدا کرده است، بنابراین این افزایش عیوب، بر روی توزیع الکترونی قسمت بدون عیب اثر گذاشته و باعث کاهش این مولفه‌ی τ_1 در هفته‌ی اول و دوم تابش‌دهی می‌شود. دلیل این کاهش را می‌توان الکترونی‌هایی دانست که از قسمت‌های معیوب شبکه بر اثر نوترون‌های سریع وارد قسمت‌های بدون عیب شبکه شده‌اند. در نتیجه افزایش چگالی الکترون باعث نابودی سریع‌تر پوزیترون و کاهش مولفه‌ی طول‌عمر τ_1 شده است. تغییرات I_1 ناشی از تغییرات شدت I_2 است که در ادامه توضیح داده می‌شود. مولفه‌ی τ_2 ناشی از نابودی پوزیترون‌ها در عیوب مانند حفره‌ها در نانوپودرها می‌باشد. اندازه‌ی این مولفه بیان‌کننده‌ی ابعاد حفره‌ها (هر چه ابعاد حفره بزرگ‌تر باشد چگالی الکترون کم‌تر و در نتیجه طول‌عمر پوزیترون بیشتر خواهد بود) و شدت آن، نشانی از چگالی عیوب در نانوپودرهاست. در نتیجه می‌توان گفت که برای نمونه‌ی تابش داده نشده حفره‌هایی با ابعاد و چگالی مشخصی در نمونه وجود دارند که پوزیترون‌ها در آن‌ها نابود می‌شوند. در هفته‌ی اول و دوم تابش‌دهی، کاهش طول‌عمر مولفه‌ی τ_2 به دلیل ایجاد حفره‌های کوچک زیاد در نمونه بر اثر تابش نوترون سریع می‌باشد که بیشتر پوزیترون‌ها در این حفره‌های کوچک ایجاد شده نابود می‌شوند. این حفره‌های کوچک می‌توانند تک‌تهی‌جای ناشی از خروج بعضی از عناصر (یا یون‌های) فریت نیکل از جایگاه‌های شبکه‌ای باشند. این یون‌های خارج شده از شبکه در قسمت‌های دیگر شبکه به صورت بین‌نشین قرار می‌گیرند و باعث می‌شوند چگالی الکترونی قسمت‌های بدون حفره‌ی شبکه افزایش یابد. افزایش شدت‌های I_2 برای نمونه‌های تابش دیده در یک هفته و دو هفته نشان‌دهنده‌ی افزایش تعداد حفره‌های کوچک می‌باشد. در هفته‌ی سوم تابش‌دهی، مولفه‌ی τ_2 افزایش می‌یابد که نشان‌دهنده‌ی این موضوع است که حفره‌های کوچک ایجاد شده در طی هفته‌های اول و دوم به هم متصل شده و حفره‌های بزرگ ایجاد کرده‌اند. از آنجا که چگالی الکترون در این حفره‌های بزرگ خیلی کم‌تر است در نتیجه طول‌عمر نابودی پوزیترون افزایش می‌یابد. همچنین از آنجا که اتصال حفره‌های کوچک باعث ایجاد حفره‌های بزرگ در تعداد کم‌تری به نسبت تعداد حفره‌های کوچک می‌شود، بنابراین شدت I_2 در هفته سوم تابش‌دهی کاهش یافته است. هنگامی که شدت I_2 افزایش می‌یابد نشان‌دهنده‌ی این است که پوزیترون‌های بیشتری در حفره‌ها نابود می‌شوند (به علت افزایش تعداد حفره‌ها)، تعداد پوزیترون‌هایی که در قسمت‌های بدون عیب نابود می‌شوند کاهش یافته و در نتیجه I_1 کاهش می‌یابد و بالعکس. مولفه‌ی τ_3 ناشی از نابودی از طریق pick-off برای اتم اورتوپوزیترونیوم تشکیل شده در حجم‌های آزاد بزرگ در نواحی بین ذرات نانوپودرها می‌باشد. پوزیترونیوم حالت مقید پوزیترون با الکترون می‌باشد و طول‌عمر آن ۱۴۲ نانوثانیه است. اما نابودی پوزیترونیوم از طریق فرآیند pick-off با الکترونی از محیط (غیر از الکترونی که در تشکیل پوزیترونیوم شرکت دارد) باعث می‌شود زمان طول‌عمر اورتوپوزیترونیوم به چندین نانوثانیه کاهش یابد [۸]. این مولفه‌ی طول‌عمر پوزیترون ناشی از نابودی پوزیترون‌ها در فضای بین نانوپودرها می‌باشد.



شکل (۴). نمودار مولفه‌های طول عمر و شدت هایشان بر حسب مدت زمان (تعداد هفته‌های) تابش دهی.

نتیجه گیری:

پرتو دهی نانوپودر فریت نیکل با تابش نوترون سریع، باعث ایجاد حفره در نانوپودرها می‌شود. تابش دهی نوترون سریع به مدت دو هفته، باعث ایجاد حفره‌های کوچک در نانوپودر شده و افزایش مدت تابش نوترون به نانوپودر به مدت سه هفته باعث به هم پیوستن حفره‌های کوچک و ایجاد حفره‌های بزرگ با چگالی کم‌تر می‌شود.

مرجع‌ها:

- [1] H. E. Hassan, T. Sharshar, M. M. Hessien and O. M. Hemeda ; “ Effect of γ -rays irradiation on Mn–Ni ferrites: Structure, magnetic properties and positron annihilation studies”; *Nucl. Instr. and Meth. B* 304 (2013) 72.
- [2] <https://www.london-nano.com/research-and-facilities/themes/areas/nuclear-materials>.
- [3] P.I. Slick; “ *Ferromagnetic Materials*”; Ed. Wohlfarth, North-Holland, Amsterdam, (1980) 96
- [4] T. Abraham; “ Economics of ceramic magnets”; *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 73 (1994) 62
- [5] W. Zhong, W. Ding, N.P. Zhang, J. M. Hong, Q. J. and Y. W. Du ; “ Key step in synthesis of ultrafine $BaFe_{12}O_{19}$ by sol-gel technique”; *J. magn. Magn. Mater.* 168 (1997) 196.
- [6] K. Haneda, C. Miyakawa and H. Kojima ; “ Preparation of High-Coercivity $BaFe_{12}O_{19}$ ”; *J. Am. Ceram. Soc.*, 57 (1974) 354.
- [7] R. Krause-Rehberg, and H.S. Leipner; “ *Positron annihilation in semiconductor*”; Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (1999).
- [8] Y Jean, P Mallon and D M Schrader 2003; “ *Principles and applications of positron and positronium chemistry*”; (World Scientific).