

ساخت دزیمر ترمولومینسانس $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (TLD-900)، بررسی منحنی درخشندگی و حساسیت و تأثیر میزان ناخالصی در آن

علی رضا معینی^{۱*}، مهدی غلامپور^۱، جعفر قیصری^۱، غضنفر میرجلیلی^۲،
ارژنگ شاهور^۳، لیلا شکاری^۴

دانشگاه یزد^۱، مرکز تحقیقات پرتو فرایند یزد^۲، مرکز تحقیقات پزشکی هسته‌ای کرج-SSDL^۳، دانشگاه تربیت مدرس^۴

چکیده

در این تحقیق دزیمر $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با روش شیمیایی و بصورت قرصهایی با قطر ۵ میلی‌متر تولید شد و برای دزیمری مورد استفاده قرار گرفت. منحنی درخشندگی حاصل از این قرصها از نظر شکل کلی، مشابه با قرص های استاندارد TLD-900 ساخت شرکت های معتبر همچون Harshaw می باشد. حساسیت آن نیز در نمونه با میزان ناخالصی $0.2\% \text{mol}$ به ۱۲ برابر حساسیت TLD-100 می رسد. همچنین در این تحقیق نشان داده شده که حساسیت $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با تغییر میزان ناخالصی بشدت تغییر می کند.

کلید واژه: ترمولومینسانس، دزیمری، دزیمری محیط، TLD-900، $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

مقدمه

$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (TLD-900) یک ماده بسیار مناسب برای دزیمری محیط [1] و دز زیاد [2] می باشد. کاربرد روز افزون این دزیمر در تحقیقات هسته‌ای لزوم ساخت و بررسی خواص آن را در کشور دو چندان می کند. استفاده گسترده از این TLD در دزیمری محیط و کاربرد ویژه این ماده برای تعیین عمر¹ در تحقیقات زمین شناسی و باستانشناسی [3]، آن را به یک ماده استراتژیک تبدیل کرده است. افزایش استفاده از TLD-900 در تحقیقات هسته‌ای، در درجه اول بدلیل حساسیت بالای (حساسیت ۳۰ تا ۵۰ برابر TLD-100 [4]). این ماده است که آنرا به مناسب ترین دزیمر برای اندازه گیری مقادیر بسیار کم دز پرتو تبدیل می کند و حتی اندازه گیری دز پرتو گاما با این دزیمر تا $2 \mu\text{Sv}$ نیز گزارش شده است [5]. وابستگی خطی دز، در یک بازه گسترده ای از دزیمر پرتو مورد نظر در نمایش محیط² و البته ارزان بودن مواد اولیه این دزیمر، از دیگر عوامل افزایش بیش از پیش کاربرد TLD-900 می باشد. این دزیمر برای اولین بار توسط یاماشیتا [6] تهیه شد. در این تحقیق جریثیات ساخت $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ به روش شیمیایی بیان می شود، همچنین منحنی درخشندگی و حساسیت این ماده مورد بررسی قرار می گیرد. تأثیر میزان ناخالصی Dy در شکل منحنی درخشندگی و حساسیت این ماده، نیز از اهداف این تحقیق می باشد.

* E-mail Address: armoini58@gmail.com

1-Dating

2-Environmental Monitorin

روش کار

برای ساخت قرص $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ابتدا CaSO_4 بهمراه Dy_2O_3 در اسید سولفوریک در دمای 300°C حل شد. سپس محلول تا تبخیر کامل اسید گرمادهی شد. حاصل پودر قهوه ای رنگ $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ بود با دانه هایی در اندازه های مختلف که ما بدون انتخاب اندازه ای خاص از دانه ها اقدام به ساخت قرص کردیم. پودر تحت نیروی $0/5$ تُن ، بوسیله پرس دستی به قرص هایی به قطر 6mm تبدیل شد.

برای آلائیده کردن^۱ شبکه بلور CaSO_4 با Dy قرص های حاصل بمدت یک ساعت در دمای 700°C گرما داده شد(پخت اولیه). این کار باعث داخل شدن یون های Dy در شبکه بلور ماده میزبان می شود. در این مرحله تقریباً 20% از ماده تبخیر شد و اندازه قطر قرص ها به 5mm ، ضخامت آن ها به $0/7\text{mm}$ و وزن آن ها به 54mg کاهش یافت که کاهش وزن بدلیل تبخیر اکسیژن می باشد. نمونه ای از قرص های ساخته شده در شکل ۱ نمایش یافته است. پیش بینی می شد تغییر میزان ناخالصی Dy در این ماده باعث تغییر حساسیت آن شود . بنابراین قرص های $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با مقادیر مختلف ناخالصی دیسپروسیم (Dy) ، $0/2\text{ mol}\%$ ، $0/15$ ،



شکل ۱: نمونه ای از قرص های تولید شده و

ابعاد آن

و $0/11$ ساخته شد. چشمه گاما مورد استفاده در این تحقیق ^{60}Co مدل PikerV9 با آهنگ دز $0/37 \frac{\text{Gy}}{\text{min}}$ می باشد

و قرصها بوسیله قرائت گرتلد^۳ TLD مجارستانی(۱۹۸۶) خوانده^۴ شده اند. پس از هربار پرتو دهی و قرائت، برای صفر کردن قرصها یا به عبارتی خالی کردن قرصها از انرژی ذخیره شده ، قرص ها مطابق با دستورالعمل های رایج بمدت یک ساعت در دمای 400°C بازپخت^۵ شده است. عمل بازپخت از طرفی سبب باز ترکیب الکترون و حفره های برانگیخته می شود و ته مانده انرژی ذخیره

شده در TLD را آزاد می کند و از سوی دیگر با جابجا کردن برخی ترازها و مراکز بین شبکه ای^۶ که با پرتو دهی ایجاد شده اند، تا حدودی باعث بازگرداندن شبکه بلور به شکل اولیه خود می شود[4]. کوره مورد استفاده برای بازپخت ، دو لیتری المنتی با دقت 3°C ، ساخت ایران است. در این تحقیق منحنی های درخشندگی $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با سه مقدار مختلف $0/2\text{ mol}\%$ ، $0/15$ و $0/11$ ناخالصی دیسپروسیم مورد بررسی قرار گرفت.

1-Doping

2-Thermoluminescence

3-TLD Reader

4-Read Out

5-Annealing

6-Interstitial Centres

نتایج:

پخت اولیه (یک ساعت در دمای 700°C) باعث کاهش ۲۰٪ در وزن قرص ها شد. بررسی انجام شده (جدول ۱)، نشان داد که میزان این کاهش وزن از دمای 300°C تا 1000°C مستقل از دمای گرمادهی است. مقایسه درصدهای وزنی عناصر در ماده میزبان قبل و بعد از گرمادهی (جدول ۲) بهمراه داده های جدول ۱، تبخیر اکسیژن را اصلی ترین عامل کاهش وزن نشان می دهد.

منحنی های درخشندگی بدست آمده برای $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با مقادیر مختلف ناخالصی (شکل ۲) بسیار مشابه اند. همه دارای یک قله دما کم در دمای 100°C و یک قله دما زیاد (قله اصلی یا قله دزیمتری) در دمای 160°C تا

170°C می باشد. نمونه های از منحنی های درخشندگی با

جدول ۱- میزان کاهش وزن $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ بعد از اولین گرمادهی

درصد کاهش وزن	زمان گرمادهی h	دمای گرمادهی $^{\circ}\text{C}$
%		
۱۸٫۸	۱	۳۰۰
۱۹٫۶	۳	۳۰۰
۱۹	۱	۴۰۰
۱۹٫۶	۲	۴۰۰
۲۰	۲	۶۰۰
۱۹٫۵	۱	۷۰۰
۱۹٫۵	۱	۸۰۰
۲۰	۱	۱۰۰۰

در قرصهای $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ساخت شرکت Harshaw معمولاً

نزدیک 220°C می باشد. تمام تلاشها برای نزدیک کردن دمای

قله دزیمتری به دمای 200°C صورت می پذیرد. عوامل متعددی

در تغییر دمای قله اصلی سهیم هستند که مهم ترین آنها اندازه

دانه های $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ می باشد. اندازه دانه ها به نحوه شکل

گیری بلور در هنگام خشک شدن ماده، دمای گرمادهی پس

از حل کردن مواد در اسید سولفوریک و سطح تماس مواد با

گرم کن بستگی دارد. البته برای کاربردهای خاص قرص ها با

قله اصلی در دمای خاص مورد نیاز است و برای این منظور

ماده ساخته شده در حالت پودری الک می شود تا دانه هایی با

اندازه های خاص در ساخت قرص شرکت داده شوند. وجود

ناخالصی های ناخواسته در ماده تولید شده که منشأ های

گونگونی چون ناخالصی مواد اصلی، مواد ناشی از ظروف و

وسایل و محیط تولید ماده دارد، نیز سبب تغییر در قله اصلی

دزیمتری می شود.

در شکل ۲ دیده می شود که میزان ناخالصی Dy در شکل کلی

منحنی درخشندگی دمای قله ها تأثیر قابل مشاهده ای ندارد

ولی از ارتفاع قله های دزیمتری و مساحت زیرمنحنی های

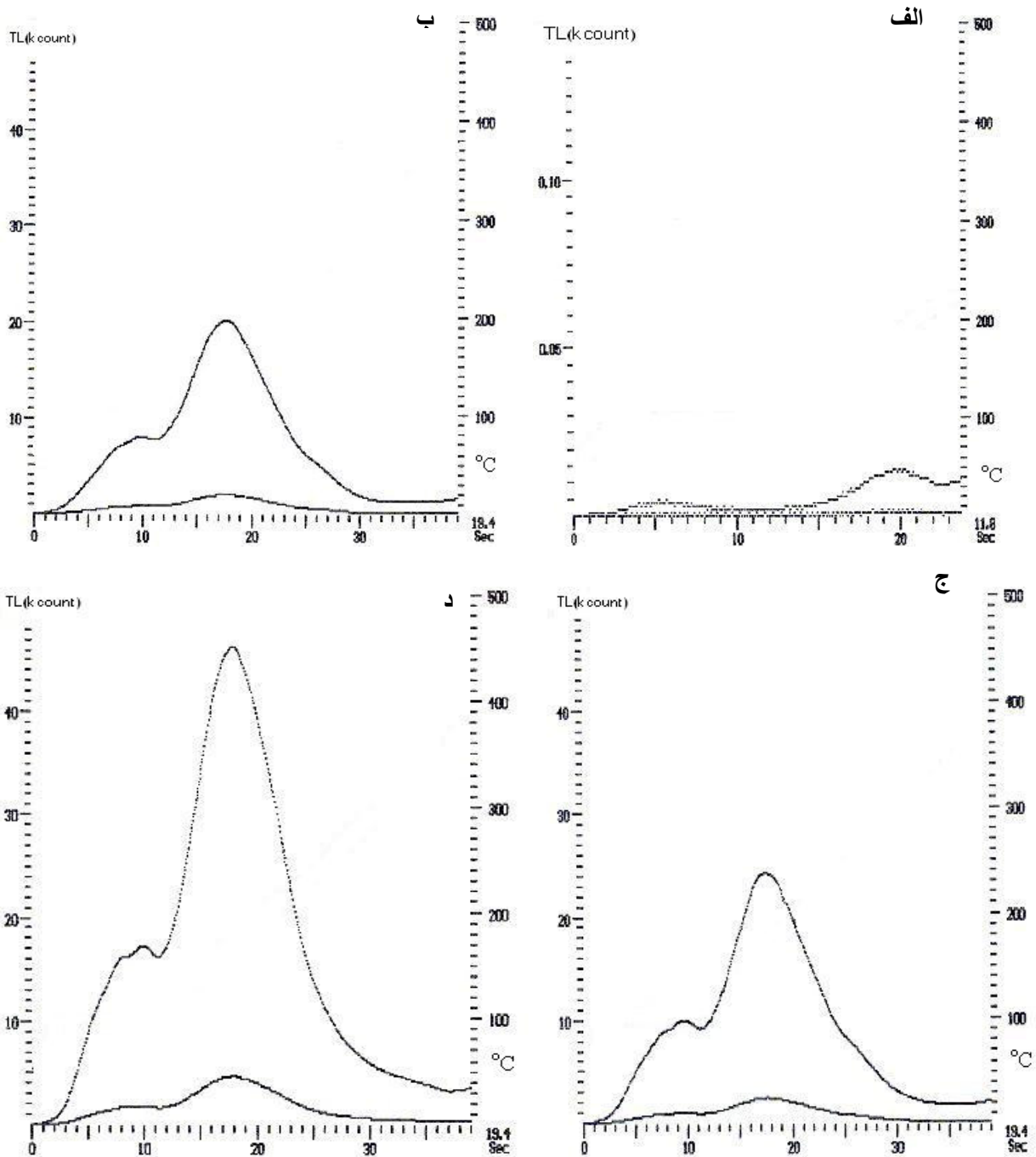
جدول ۲- درصد وزنی عناصر تشکیل دهنده

CaSO_4 قبل و بعد از اولین گرمادهی در

دمای 700°C

O	S	Ca	عناصر تشکیل دهنده CaSO_4
۴۷	۲۳٫۵	۲۹٫۵	درصد وزنی قبل از گرمادهی (%)
۴۳	۲۶	۳۱	درصد وزنی بعد از گرمادهی (%)

درخشندگی، تأثیر تغییر ناخالصی در حساسیت TLD شدیداً مشهود است.



شکل ۲: منحنی‌های درخشندگی CaSO_4 و $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با ناخالصی‌های مختلف بعد از پرتو دهی $1/5\text{Gy}$ از چشمه ^{60}Co . افزایش TL با افزایش ناخالصی کاملاً مشهود است، الف) CaSO_4 پرس شده، ب) $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ساخته شده با ناخالصی به میزان 0.11% mol، ج) $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ساخته شده با ناخالصی به میزان 0.15% mol، د) $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ساخته شده با ناخالصی به میزان 0.2% mol.

جدول ۳: حساسیت و حساسیت نسبی CaSO_4 با و بدون ناخالصی. TLD-100 مورد استفاده ساخت شرکت

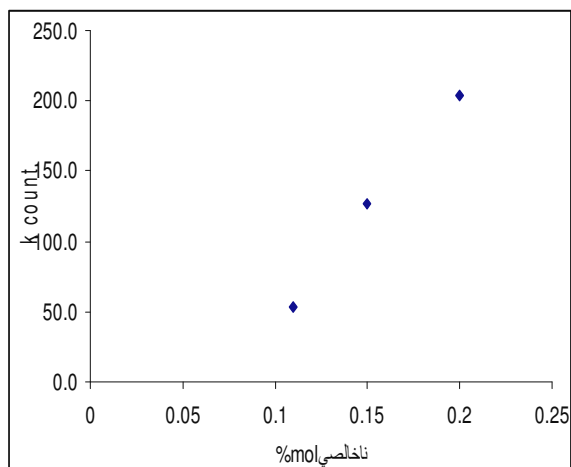
Harshaw است.

میزان ناخالصی Dy	TLD-100 (Harshaw)	۰ % (خالص)	۰/۱۱mol%	۰/۱۵mol%	۰/۲mol%
حساسیت	۱۷۰۰۰	۸۹	۵۳۱۶۳	۱۲۶۹۱۰	۲۰۳۷۸۷
حساسیت نسبی	۱	$۵/۲ \times ۱۰^{-۳}$	۳/۱۳	۷/۴۶	۱۲

حساسیت بصورت سطح زیر منحنی درخشندگی تقسیم بر دز واقعی تعریف می شود. براساس این تعریف مقدار بدست آمده برای حساسیت به سیستم قرائت گر TLD بستگی دارد. در قرائت گر TLD مورد استفاده در این تحقیق حساسیت نمونه خالص CaSO_4 و نمونه های $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با میزان های مختلف ناخالصی ۰/۱۱ ، ۰/۱۵ و ۰/۲ درصد مول برای پرتو دهی با دز ۱Gy در جدول ۳ آمده است. برای در دست داشتن معیاری تقریباً مستقل از سیستم قرائت TLD ، از حساسیت نسبی که به صورت نسبت حساسیت TLD مورد نظر به حساسیت TLD-100 تعریف می شود، استفاده می شود.

هرچند حساسیت قرص های ساخته شده در مقایسه با TLD-100 بارها بیشتر است ولی حساسیت مورد انتظار برای TLD-900 (با حساسیت نسبی ۱۹) را ندارد [4]. پرس کردن پودر $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ در فشار بالا که خود سبب شکستن برخی شبکه های بلوری می شود، یکی از دلایل پایین بودن نسبی حساسیت قرص های ساخته شده می باشد. انتخاب نکردن دانه هایی با اندازه خاص (بین $۱/۲۴\mu\text{m}$ تا $۱/۸۶\mu\text{m}$)، وجود ناخالصی در مواد اولیه و شیوه ساخت از دیگر عوامل در پایین بودن حساسیت مورد انتظار است.

جدول ۳ همچنین بیانگر حساسیت بسیار پایین CaSO_4 نسبت به $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ می باشد. در واقع با افزودن دیسپروسیم بعنوان فعالساز، حساسیت هزاران برابر افزایش می یابد (برای مورد ۰/۲mol% تقریباً حساسیت



۲۳۰۰ برابر شده است). همانگونه که در شکل ۳ نشان داده شده است، حساسیت قرص ها از ۰/۱۱mol% تا ۰/۲ mol% بنحو چشمگیری افزایش یافته. البته این نتیجه گیری اشتباه است که همیشه با افزایش ناخالصی حساسیت افزایش می یابد. تحقیقات نشان داده که ناخالصی ۰/۲ mol% مقدار بیشینه حساسیت را در $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ایجاد می کند [4] و با افزایش ناخالصی بعد از این مقدار ، حساسیت بشدت افت می کند.

شکل ۳- افزایش حساسیت با افزایش درصد ناخالصی Dy

در CaSO_4

بحث و نتیجه گیری

منحنی درخشندگی $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ساخته شده به روش شیمیایی در این پژوهش دارای قله اصلی در دمای حدود 167°C است که با قله اصلی 220°C نمونه های ساخت شرکت Harshaw اختلاف دما دارد. با انتخاب دانه های $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ با اندازه خاص و خلوص بیشتر مواد اولیه می توان این اختلاف را کاهش داد. حساسیت نمونه TLD با مقدار ناخالصی $0.2\text{mol}\%$ بیشترین حساسیت را از خود نشان می دهد. این بدلیل افزایش مراکز بازترکیب با افزایش یون Dy می باشد. ضمن اینکه نمونه سولفات کلسیم آلائیده با Dy در مقایسه با نمونه خالص هزاران برابر حساس تر است که با نتایج بدست آمده در تحقیقات معتبر خارجی توافق دارد [7].

سپاسگزاری

در پایان از همکاری آقایان دکتر گرجی استاد شیمی دانشگاه یزد، زارع شاهی، پارسائیان، پورصالح از مرکز تحقیقات پرتو فرایند یزد، غفوری از مرکز تحقیقات پزشکی هسته ای کرج، دکتر منوچهری از سازمان انرژی اتمی ایران، که مرا در انجام این تحقیق یاری دادند تشکر می کنم.

مراجع

- [1] H. H. Fayez, " Measurements of environmental terrestrial gamma radiation dose rate in three mountainous locations in the western region of Saudi Arabia", Environmental Research, 98, 160–166 (2005).
- [2] V.K. Mathur, A.C. Lewandowski, N.A. Guardala, J.L. Price, " High dose measurements using thermoluminescence of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ", Radiation Measurements 30, 735-738 (1999).
- [3] E. L. Tullborg, S. A. Larson, " Dating methods and geochronology of fractures", Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (June 2001) p29.
- [4] S. W. S. McKeever, M. Moscovitch, P. D. Townsend, " Thermoluminescence Dosimetry Materials ", Nuclear Technology Publ., Ashford, Kent (1995)192.
- [5] T. Yamashita, N. Nada, H. Onishi, In: Proc. 2nd Conf. on Luminescence Dosimetry, Gatlinburg, CONF 680920, p. 4 (1968); Health Phys.56, 551 (1986).
- [6] M. G. Guelev, I. T. Mischev, B. Burgkhardt, E. Piesch, RPD.51(1994)35.
- [7] T. Karaliy, A. P. Rowlandsy, P. D. Townsedy, M. Prokicz, J. Olivaresx, "Spectral comparison of Dy, Tm and Dy/Tm in CaSO_4 thermoluminescent dosimeters", J. Phys. D: Appl. Phys. 31 Printed in the UK. 754–765 (1998).