



## شبیه‌سازی یک دزیمتر جدید بر پایه‌ی ویژگی‌های الکتریکی کامپوزیت پلی‌متیل متاکریلات- نانولوله‌ی کربن

شهریار ملکی، فرهود ضیایی\*، مجید مجتهدزاده لاریجانی

پژوهشکده‌ی کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۱۳۶۵-۳۴۸۶، تهران - ایران

**چکیده:** نانولوله‌های کربن از طریق آمیختن با پلیمرها در کسر وزنی خاصی موسوم به آستانه‌ی گذر الکتریکی، منجر به افزایش ناگهانی و چندمرتبه‌ای رسانندگی الکتریکی کامپوزیت پلیمر- نانولوله‌ی کربن می‌شوند. در پژوهش حاضر، با توجه به این ویژگی، ایده‌ی استفاده از کامپوزیت پلی‌متیل متاکریلات- نانولوله‌ی کربن به شکل یک دزیمتر فعال مطرح شد. از جمله عوامل مؤثر در پاسخ این نوع دزیمتر، تغییر مقاومت الکتریکی کامپوزیت در اثر جذب پرتو است. به منظور بررسی پارامترهای دزیمتری مربوط به کامپوزیت فوق در آهنگ‌های دز مختلف، از نرم‌افزار COMSOL و روش المان محدود بهره‌گیری شد. در این شبیه‌سازی چگالی جریان الکتریکی کامپوزیت PMMA-CNT با ضخامت  $10\ \mu\text{m}$  تحت ولتاژ ثابت ۳V در آهنگ‌های دز مختلف در مدت ۲ min برای نمونه‌هایی با درصد‌های وزنی متفاوت نانولوله کربن، نزدیک به ناحیه‌ی آستانه‌ی گذر الکتریکی یعنی ۰/۱۷، ۰/۱۹ و ۰/۳۰ به دست آمد. مقدار دز جذبی از حاصل ضرب آهنگ دز در مدت زمان تابش‌دهی محاسبه شد. خطی بودن پاسخ دز از ۴۰۰ mGy تا حدود ۳ Gy در گستره‌ی دز تشخیصی و درمانی را می‌توان عاملی مثبت به منظور استفاده از ماده‌ی کامپوزیتی فوق با کاربردهای دزیمتری تلقی کرد.

**کلیدواژه‌ها:** شبیه‌سازی، دزیمتر فعال، کامپوزیت، نانولوله کربن، پلی‌متیل متاکریلات

## Simulation of a Novel Dosimeter Based on Electrical Characteristics of Polymethyl Methacrylate- Carbon Nanotube Composite

S. Malekie, F. Ziaie\*, M.M. Larijani

Radiation Application Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-3486, Tehran-Iran

**Abstract:** Combination of carbon nanotubes with polymers in an especial weight percentage called electrical percolation threshold, leads to a sudden increase of several orders of magnitude of the electrical conductivity of the polymer-carbon nanotube composite. In the present research, considering these characteristics, the idea of using Polymethyl Methacrylate-Carbon Nanotube composite as an active dosimeter is exhibited. One of the factors affecting the response of this type of dosimeter is the variation of electrical resistance in the composite due to absorption of radiation. For investigation of dosimetric parameters of this composite in different dose rates, the COMSOL software and finite element method were utilized. In this simulation, the electrical current density of PMMA-CNT composite with a thickness of  $10\ \mu\text{m}$  under a constant voltage of 3 V in different dose rates for 2 min was calculated for the samples having different weight percentages of carbon nanotubes adjacent to the electrical percolation threshold region, namely 0.17, 0.19 and 0.30. The value of the absorbed dose was calculated through the product of the dose rate by the irradiation time. Linearity of the dose response in the range of 400 mGy to ~3 Gy in the diagnostic and therapeutic dose levels could be considered as a positive factor for dosimetry applications of this composite material.

**Keywords:** Simulation, Active Dosimeter, Composite, Carbon Nanotube, Polymethyl Methacrylate



## ۱. مقدمه

آشکارسازی و دزیمری تابش‌های یون‌ساز، یکی از زمینه‌های پژوهشی و کاربردی بسیار مهم را در صنعت هسته‌ای تشکیل می‌دهد. ایده‌ی استفاده از نانو کامپوزیت‌های پلیمری با هدف ساخت یک دزیمر فعال مطرح شده است که در صورت تجاوز آهنگ دز تابشی از آستانه‌ی بحرانی، سیستم هشداردهنده‌ی صوتی/ تصویری را بتواند فعال کند. این گونه مواد به خاطر سهولت در فراوری و هزینه‌ی نسبتاً پایین، مزایای فراوانی دارند. پس از آن که ایچیمادا در سال ۱۹۹۱ نانولوله‌های کربن<sup>(۱)</sup> (CNTs) را ابداع کرد، امکان ساخت کامپوزیت‌های پلیمر- نانولوله کربن فراهم شد [۱]. نانولوله‌های کربنی دارای خواص الکتریکی منحصر به فرد هستند، به طوری که نوع تک‌دیواره‌ی آن (SWCNT)<sup>(۲)</sup> بیش‌ترین رسانندگی را در میان سایر الیاف کربنی دارد و تحرک پذیری الکتریکی آن‌ها در دمای اتاق بیش از  $10^5$  cm<sup>2</sup>/V.s است [۲]. نانولوله‌های کربنی قادرند تا چگالی جریان الکتریکی بالغ بر  $10^9$  A/cm<sup>2</sup> از خود عبور دهند [۳]. پس از سال ۱۹۹۴ که آجایان و همکاران برای اولین بار نانولوله‌های کربنی چند دیواره را به عنوان مواد پُرکننده در بستر پلیمری معرفی نمودند، پژوهش‌های بسیاری روی ساخت، بهبود، مدل‌سازی و شناسایی چنین ساختارهایی متمرکز شده‌اند [۴].

در زمینه‌ی تأثیر تابش بر خواص الکتریکی کامپوزیت‌ها، چندین کار پژوهشی صورت گرفته است. کروس تینسکا و همکاران در سال ۲۰۰۷، ویژگی‌های دزیمری فیلم ضخیم پلی-وینیلیدین فلوراید (PVDF)<sup>(۳)</sup> با ضخامت  $23 \mu\text{m}$  و پُرکننده‌های کربن تحت تابش گاما و در ولتاژ  $3 \text{ V}$  را بررسی کردند [۵]. در سال ۲۰۰۸، جیازی ما و یثو با استفاده از نظریه‌ی گذر، آثار مربوط به طول و چگالی نانولوله‌های کربن بر رسانندگی الکتریکی یک حس گر تابشی را مطالعه کردند [۶]. انریکو باررا و همکاران در سال ۲۰۱۰ اندرکنش تابش با کامپوزیت پلیمر- نانولوله‌ی کربن در قالب یک اختراع ثبت و بررسی کردند [۷].

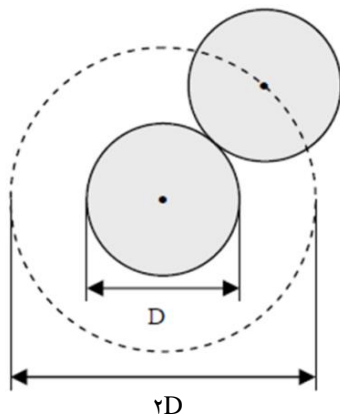
افزودن نانولوله‌های کربنی به بستر پلیمر، منجر به تغییر ثابت دی‌الکتریک ماده‌ی پلیمری می‌شود. در صورتی که چیدمان CNTها در بستر پلیمری هم راستا باشد، ناحیه‌ی خازنی در کل حجم دی‌الکتریک غالب خواهد بود که به دنبال آن، گذردهی الکتریکی مؤثر کامپوزیت و ظرفیت الکتریکی آن افزایش خواهد یافت. در حالی که توزیع پراکنده‌ی CNTها در بستر پلیمری با توجه به افزایش احتمال پدیده‌ی گذر<sup>(۴)</sup> (پدیده‌ای که

با درصد وزنی خاصی از نانولوله در پلیمر به شکل افزایش قابل توجه رسانندگی الکتریکی رخ می‌دهد)، منجر به غالب شدن ناحیه رسانشی در دی‌الکتریک و افزایش چگالی جریان خواهد شد. در ناحیه رسانشی، شارش بارهای الکتریکی در دی‌الکتریک از راه ارتباط CNTها با یکدیگر خواهد بود که این عمل به شیوه‌ی تونل زنی کوانتومی یا جهش الکترون‌ها بین نانولوله‌هایی که به اندازه‌ی کافی به یکدیگر نزدیکند، صورت می‌گیرد [۸].

منابع زیادی در زمینه‌ی بررسی ویژگی‌های دزیمری مواد مختلف با استفاده از نرم‌افزار COMSOL، در دسترس نیست. در این پژوهش با بررسی آخرین منابع مشخص شد که به منظور اندازه‌گیری دز مربوط به چشمه براکی تراپی  $^{192}\text{Ir}$ ، یک کالریمر بر مبنای شارش گرمایی با استفاده از روش‌های اِلمان محدود، و مونته کارلو با نرم‌افزار COMSOL Multiphysics 3.5a مدل‌سازی شده است [۹، ۱۰]، در حالی که دقت تغییرات دمایی در کالریمر  $0.1 \text{ K}$  بوده است. در این پژوهش نیز به منظور شبیه‌سازی دزیمر کامپوزیت پلی‌متیل متاکریلات- نانولوله کربن<sup>(۵)</sup> (PMMA-CNT) در محدوده‌ی مقیاس آهنگ دز  $\text{mGy/min}$ ، دقت مذکور در گستره‌ی دمایی  $10^{-4}$ – $10^{-5} \text{ K}$  قرار گرفته است. یکی از ویژگی‌هایی که شبیه‌سازی حاضر را از سایر پژوهش‌های مشابه متمایز می‌سازد، استفاده از مدل VRH<sup>(۶)</sup> یا جهش برد متغیر به منظور بررسی وابستگی دمایی رسانندگی الکتریکی نانولوله کربن و متعاقب آن کل کامپوزیت با الگوبرداری از رهیافت کالریمری برای تبدیل آهنگ تغییر دما به آهنگ دز در مقیاس  $\text{mGy/min}$  است. مدل VRH در واقع برای نشان دادن وابستگی رسانندگی الکتریکی و ترابرد الکترونی مواد نیمه‌رسانا به دما است. از آن‌جا که شبیه‌سازی حاضر، با آهنگ‌های دز نسبتاً پایین در مقیاس  $\text{mGy/min}$  سر و کار دارد، بنابراین به منظور افزایش حساسیت‌پذیری دزیمر مذکور از راه محاسبه‌ی چگالی جریان، مدل VRH نیز گنجانده شده است تا پاسخ دزیمر در این مقیاس برای آهنگ‌های دز مختلف تفکیک‌پذیر باشد.

هدف از کار حاضر، برآورد پاسخ دزیمر کامپوزیت PMMA-CNT با ضخامت  $10 \mu\text{m}$ ، برای درصدهای وزنی مختلف از نانولوله‌ی کربن تحت ولتاژ ثابت است. در این شبیه‌سازی، از مدل پیشنهادی تحت عنوان مدل CSROC<sup>(۷)</sup> [۱۱]، به منظور پراکنش نانولوله‌ها در بستر پلیمری بهره‌گیری شده است.

## ۲. مواد و روش‌ها



شکل ۱. حجم مستثنا در اطراف ذره (به صورت نقطه چین) [۱۳].

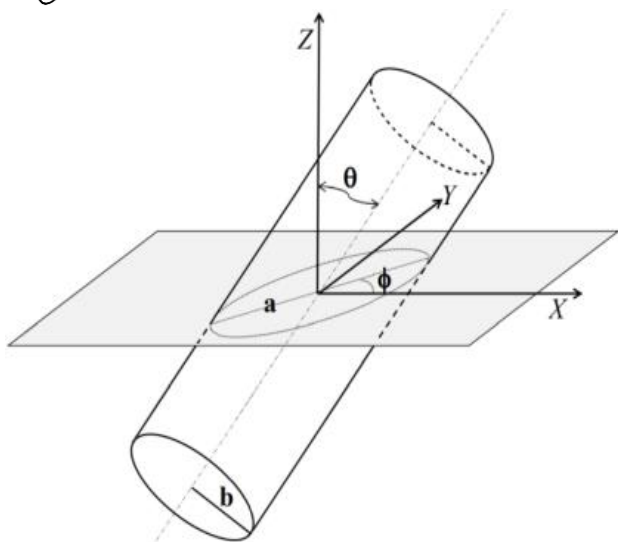
اصولاً بین ضخامت کامپوزیت، کسر وزنی نانولوله‌ها و مقدار ولتاژ به کار رفته در کامپوزیت، یک همبستگی وجود دارد. در فرایند شبیه‌سازی، برای انتخاب ولتاژ، آزادی عمل بیش‌تری وجود دارد، اما در حالت تجربی، انتخاب ولتاژ باید به گونه‌ای باشد که ابتدا با الکترومتر قابل اندازه‌گیری باشد، دوم، به اندازه‌ای باشد که بتواند از پدیده‌ی بازترکیب الکترون-حفره‌ها در حین تابش‌دهی جلوگیری کند. سوم، از مهاجرت ذرات فلزی الکترودها به بستر پلیمری جلوگیری کند. در شبیه‌سازی، چون ایده‌ی اصلی کار، استفاده از رهیافت کالریمتری بوده است، بنابراین بحث بازترکیب الکترون-حفره‌ها مطرح نیست و ولتاژ ۳۷ برای فیلم کامپوزیتی با ضخامت  $10 \mu\text{m}$  به کار رفت.

در شکل ۲، نمایی از برش عرضی کامپوزیت در PMMA-CNT به تصویر کشیده شده است. همان‌گونه که در این شکل ملاحظه می‌شود، سطح مقطع نانولوله‌های کربن با شعاع ثابت  $1 \text{nm}$  در حالت دوبعدی به صورت بیضی در نظر گرفته شده است. از طرفی، با توجه به اکثر مقالات تجربی، مقدار نسبت ابعادی<sup>(۹)</sup> (نسبت طول به قطر یا  $L/D$ ) نانولوله‌ها به طور متوسط حدود  $1000$  گزارش شده است [۱۴]. البته عوامل مختلفی از جمله نحوه‌ی ساخت کامپوزیت‌های پلیمر-نانولوله‌ی کربن به روش‌های محلولی، مخلوط مذاب، پلیمریزاسیون در جا و مانند آن، در تعیین مقدار آستانه‌ی گذر الکتریکی این کامپوزیت‌ها مؤثرند. به عنوان مثال، در فرایندهای مذکور، فراصوت‌دهی<sup>(۱۰)</sup> منجر به شکستن و کوتاه شدن طول نانولوله‌ها می‌شود، و به دنبال آن، مقدار آستانه‌ی گذر نیز تغییر می‌کند.

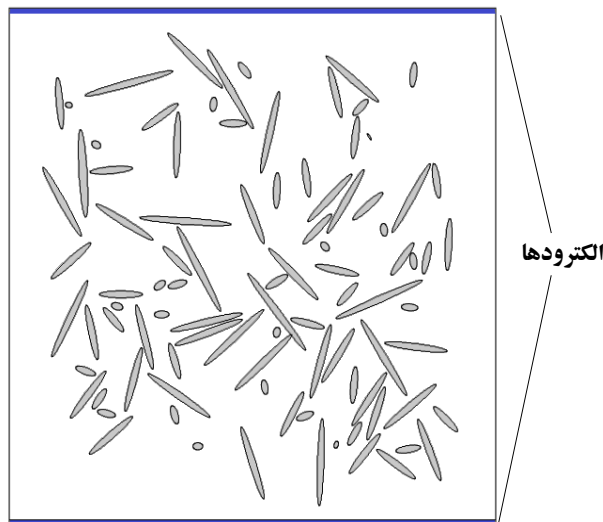
## ۱.۲ روش کار

به منظور شبیه‌سازی مقدار آستانه‌ی گذر الکتریکی کامپوزیت PMMA-CNT و هم‌چنین برآورد تغییر نسبی چگالی جریان  $(J-J_0)/J_0$  در اثر جذب پرتو در آهنگ‌های دز مختلف (براساس روابط کالریمتری) از نرم‌افزار COMSOL بهره‌گیری شد. در واقع این نرم‌افزار از طریق حل عددی معادله‌ی لاپلاس در شرایط مرزی مشخص به روش المان محدود، به یافتن پتانسیل الکتریکی و به دنبال آن سایر کمیت‌های الکتریکی در مکان‌های مختلف می‌پردازد. با این هدف، به منظور برآورد ویژگی‌های دزیمتری کامپوزیت PMMA-CNT در نرم‌افزار مذکور، از مدل‌های جفت شده‌ی جریان الکتریکی و انتقال حرارت در جامدات بهره‌گیری شد. محاسبه‌ی آستانه‌ی گذر الکتریکی کامپوزیت PMMA-CNT در حالت ساکن، و بررسی ویژگی‌های دزیمتری کامپوزیت مذکور به صورت وابسته به زمان انجام شد. به منظور شبیه‌سازی این دزیمتر، فرض شده است که نانولوله‌های کربن با توزیع تصادفی و با الگو از رهیافت حجم مستثنا<sup>(۸)</sup> به صورت همگن در بستر پلیمر پراکنده شده‌اند. مطابق شکل ۱، حجم مستثنا ( $V_{ex}$ ) عبارتست از حجم احاطه‌کننده‌ی یک ذره به نحوی که مرکز یک ذره‌ی مشابه مجاور آن، مجاز به نفوذ در آن نباشد، یا به عبارتی ذرات با یک‌دیگر هم‌پوشانی نداشته باشند. ایده اصلی در این رهیافت، آنست که آستانه‌ی گذر بیش‌تر از آن که با حجم واقعی ذرات پُرکننده در ارتباط باشد، به  $V_{ex}$  مرتبط است [۱۲].

در تولید اعداد تصادفی مربوط به مختصات فضایی نانولوله‌های کربن در بستر پلیمری، از نرم‌افزار Matlab استفاده شده است. با توجه به محدودیت‌های روش سه‌بعدی در مش‌زدن هندسه و هم‌چنین حل معادله‌ی لاپلاس در شرایط مرزی مشخص (نویمان و دیریکله) برای این کامپوزیت، ایده‌ی یک روش دوبعدی تعمیم یافته در این پژوهش مطرح شد که ضمن محاسبه‌ی آستانه گذر در کامپوزیت مذکور، بتوان رسانندگی الکتریکی آن را در کسرهای وزنی مختلف CNT نیز پیش‌بینی کرد.



شکل ۳. نمایشی از توزیع فضایی نانولوله‌ی کربن و سطح مقطع بیضوی آن [۱۵].



شکل ۲. نمایشی از برش عرضی کامپوزیت PMMA-CNT (سطح مقطع‌های بیضوی در نتیجه‌ی برش غیرمتعامد نانولوله‌ها به وجود آمده‌اند).

جدول ۱. خواص فیزیکی مواد مورد استفاده در شبیه‌سازی در دمای اتاق [۱۷، ۱۶]

ماده	چگالی (g/cm <sup>3</sup> )	گذردهی الکتریکی	ظرفیت گرمایی (J/kg.k)	رسانندگی گرمایی (W/m.K)	رسانندگی الکتریکی (S/m)
CNT	۱٫۵	۲۰۰	۶۹۳	۳۰۰۰	۳٫۳۱×۱۰ <sup>۴</sup>
PMMA	۱٫۱۹	۳	۱۳۴۷	۰٫۱۹	۱٫۸۲×۱۰ <sup>-۱۳</sup>

از آن‌جا که رسانندگی الکتریکی نانولوله‌های کربن وابسته به دماست، در محاسبات مربوط به شبیه‌سازی، از مدل VRH استفاده می‌شود. اولین بار مات، این مدل را برای گذارهای الکترونی بین حالات جای‌گزیده در گاف باند مواد نیمه‌رسانا با در نظر گرفتن پدیده‌ی تونل‌زنی حامل‌های بار ارائه کرد. با استفاده از این مدل، رسانندگی الکتریکی نانولوله‌های کربن در فضای سه‌بعدی عبارت است از [۱۷]:

$$\sigma_{CNT} = \frac{\sigma_o}{\sqrt{T}} \exp \left[ - \left( \frac{T_o}{T} \right)^{\frac{1}{F}} \right] \quad (1)$$

$$\sigma_o = \frac{e^r v_{ph}}{\epsilon} \sqrt{\frac{qN(E_F) \xi}{\lambda \pi k_B}} \quad (2)$$

شکل ۳، نمایشی از توزیع فضایی نانولوله‌ی کربن و سطح مقطع بیضوی آن را نمایش می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود، در این مدل فرض بر این است که نانولوله‌های کربن به صورت تصادفی در فضای سه‌بعدی به صورت همگن پراکنده شده‌اند. بسته به نحوه‌ی سمت‌گیری نانولوله‌ی کربن با محور Z، سطح مقطع آن از دایره تا بیضی‌هایی کشیده شده خواهد بود، به طوری که اگر نانولوله در راستای Z باشد،  $a = b$  است و  $a$  و  $b$  به ترتیب نیم قطر بزرگ و کوچک بیضی‌اند) و سطح مقطع آن به صورت دایره نمایان خواهد شد.

نحوه‌ی انتخاب پارامترهای بیضی به همراه جزئیات آن در قالب یک مدل جدید به نام مدل CSROC در این پژوهش ارائه شده است [۱۱]. در تعیین پارامترهای هندسی یک بیضی از تابع تصادفی rand استفاده شد، به این صورت که

$$y = [(W - ra) \times rand] + a, x = [(L - ra) \times rand] + a$$

آن  $x$  و  $y$  مختصات مرکز بیضی،  $L$  و  $W$  به ترتیب ضخامت و پهنا‌ی کامپوزیت ( $L=W=10 \mu m$ )،  $\theta$  زاویه قطبی، و  $\phi$  زاویه‌ی سمتی نانولوله‌ی کربن در فضا است. خواص فیزیکی مواد مورد استفاده در این شبیه‌سازی در جدول ۱ ارائه شده‌اند.



COMSOL، یک کد محاسباتی الکترومغناطیس بر مبنای روش المان محدود است و امکان تعریف چشمه‌های یون‌ساز و آهنگ دز در آن وجود ندارد، بنابراین برای رفع این کمبود و امکان محاسبات دزیمتری کامپوزیت PMMA-CNT، در این شبیه‌سازی از رهیافت کالریمتری به طور غیرمستقیم استفاده شد. مطابق این رهیافت، در صورت بی‌دررو بودن یک سیستم [۹]:

(۵)

$$D = C_p \Delta T$$

که در آن،  $D$  دز جذبی،  $C_p$  ظرفیت گرمایی در فشار ثابت برای کل کامپوزیت و  $T - T_0 = \Delta T$  افزایش دماست. در این شبیه‌سازی  $T_0 = 293.15 \text{ K}$  دمای اولیه، و  $T$  دمای ثانویه است. اما از آنجا که برای یک دزیمتر فعال، خطی بودن پاسخ دزیمتر در آهنگ‌های دز مختلف از اهمیت خاصی برخوردار است، ضرورت دارد تا با دیفرانسیل‌گیری از رابطه‌ی (۵)، مقدار آهنگ دز محاسبه شود. با انجام این کار مقدار آهنگ دز عبارتست از:

(۶)

$$\dot{D} = C_p \frac{\partial T}{\partial t}$$

در محاسبه‌ی آهنگ دز، از تقریب  $\frac{\Delta T}{\Delta t} \cong \frac{\partial T}{\partial t}$  استفاده شده، و در آن  $\frac{\Delta T}{\Delta t}$  شارش گرمایی در مدت زمان  $\Delta t = 2 \text{ min}$  است. ظرفیت گرمایی PMMA در گستره‌ی دمایی ۱۵۰ تا ۳۷۰ K با استفاده از رابطه‌ی (۷):

(۷)

$$C_p = 19002 \times 10^5 T^{-2} + 40414 T + 1609886$$

و ظرفیت گرمایی نانولوله‌های کربن در گستره‌ی دمایی ۲۵۰ تا ۳۰۰۰ K با استفاده از رابطه‌ی (۸) محاسبه شده است:

$$C_p = 128656 + 22 \times 10^{-2} T - 21561 \times 10^{-6} T^{-1} - 10378 \times 10^{-7} T^{-2} + 3805 \times 10^{-8} T^{-3} - 34319 \times 10^{-11} T^{-6}$$

$$T_o = \frac{181}{\xi^r N(E_F) k_B}$$

که در آن‌ها  $T_o$  دمای مشخصه‌ی مات (پارامتری که مشخص‌کننده‌ی درجه‌ی بی‌نظمی سیستم الکترونی مورد نظر است)،  $N(E_F)$  چگالی الکترونی حالات جای‌گزیده در تراز فرمی، و  $\xi$  طول جای‌گزیدگی توابع موج الکترونی هستند. هم‌چنین پارامترهای  $e$  و  $k_B$  به ترتیب مربوط به ثابت بولتزمن، بار بنیادی الکترون و فرکانس فونون‌ها در فرایند جهش هستند. گروه پژوهشی بینسان و همکاران نشان دادند که برای نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره با چگالی  $1.5 \text{ g/cm}^3$ ، مقدار  $T_o = 2100 \text{ K}$  است [۱۷]. این روابط صرفاً برای محاسبه‌ی رسانندگی الکتریکی نانولوله‌ی کربن در دماهای مختلف استفاده می‌شود و در این شبیه‌سازی به خاطر پایین بودن رسانندگی الکتریکی پلیمرها در مقایسه با CNTها، فرض شده است که رسانندگی الکتریکی PMMA در دماهای مختلف ثابت باشد. به نظر می‌رسد کاربرد روابط فوق با توجه به رسانندگی گرمایی زیاد نانولوله‌های کربنی، برای ناحیه‌ی گذار ملموس‌تر باشد. قبل از ناحیه‌ی گذار، با توجه به پراکنش نانولوله‌ها، فاصله‌ی تونل‌زنی بیش‌تر است و احتمال جهش الکترون‌ها در ترازهای انرژی کامپوزیت کم‌تر خواهد بود. در این شبیه‌سازی، محاسبات به دو دسته‌ی محاسبه‌ی رسانندگی الکتریکی کامپوزیت PMMA-CNT قبل از تابش دهی با هدف محاسبه‌ی چگالی جریان تاریک<sup>(۱۱)</sup>، و محاسبه‌ی چگالی جریان الکتریکی هنگام تابش دهی تقسیم‌بندی شده‌اند. برای محاسبه‌ی چگالی جریان، از رابطه‌ی (۴) استفاده می‌شود:

(۴)

$$J = \sigma E = \sigma \frac{V}{d}$$

که در آن،  $J$  چگالی جریان،  $\sigma$  رسانندگی الکتریکی کامپوزیت،  $E$  میدان الکتریکی،  $V$  پتانسیل به کار رفته، و  $d$  فاصله‌ی بین الکترودها یا ضخامت کامپوزیت است. از آنجا که کد



الکترون‌ها در ماده می‌شود و هم‌چنین با ایجاد لایه‌های میانی بین ترازهای ظرفیت و رسانش، می‌توان گفت که اختلاف انرژی بین حالات جای‌گزیده و سایر حالات کاهش می‌یابد. در نهایت، کاهش فاصله‌ی تونل‌زنی الکترون‌ها و کاهش گاف باند انرژی پلیمر، منجر به افزایش آهنگ جهش الکترون‌ها در این گونه سیستم‌های نامنظم می‌شود.

(۸)

که در آن،  $T$  برحسب  $K$  و  $C_p$  برحسب  $\frac{J}{kg.K}$  است. ظرفیت گرمایی کامپوزیت PMMA-CNT از رابطه‌ی (۹) به دست می‌آید [۱۸]:

$$C_p = [(C_p(\text{PMMA}) \times W_{\text{PMMA}}) + (C_p(\text{CNT}) \times W_{\text{CNT}})] \quad (9)$$

که در آن  $W_{\text{PMMA}}$  و  $W_{\text{CNT}}$  به ترتیب کسرهای وزنی مربوط به پلی‌متیل متاکریلات و نانولوله‌ی کربن هستند. یادآوری می‌شود که در مورد یک مخلوط دو ماده‌ای، رابطه‌ی  $W_{\text{PMMA}} + W_{\text{CNT}} = 1$  برقرار است.

### ۳. نتایج و بحث

به منظور اعتبارسنجی مدل به کار گرفته شده در این شبیه‌سازی، برای محاسبه‌ی آستانه‌ی گذر الکتریکی در کامپوزیت PMMA-CNT، مقایسه‌ای با نتایج تجربی سایر پژوهشگران در غیاب تابش، به همراه روش ساخت کامپوزیت در جدول ۲ ارائه شده است. مقادیر تجربی آستانه‌ی گذر مربوط به کارهای تجربی دیگران از طریق نمودار رسانندگی الکتریکی کامپوزیت برحسب درصد وزنی نانولوله‌ی کربن، جایی که این رسانندگی جهش چندمرتب‌ه‌ای از خود نشان می‌دهد قابل تشخیص خواهد بود. همان‌گونه که از این جدول پیداست، مقادیر تجربی آستانه‌ی گذر الکتریکی<sup>(۱۲)</sup> (EPT) برای کامپوزیت فوق‌کم‌تر از ۱٪ وزنی پُرکننده‌ی نانولوله‌ی کربن در بستر پلی‌متیل متاکریلات است و نتیجه‌ی شبیه‌سازی حاضر مقدار  $g \ 0.1\%$  وزنی را گزارش می‌کند. این نتیجه، بر استفاده از ابزار شبیه‌سازی با نرم‌افزار COMSOL به منظور محاسبه‌ی مقدار EPT در این کامپوزیت صحه می‌گذارد. در مورد کامپوزیت پلیمر-نانولوله‌ی کربن که یک سیستم نامنظم به شمار می‌رود، در یک دمای ویژه، احتمال جهش<sup>(۱۳)</sup> الکترون از یک حالت جای‌گزیده به حالتی دیگر، به فاصله و اختلاف انرژی بین این دو حالت بستگی دارد [۱۹]. به نظر می‌رسد افزودن CNT به بستر پلیمری از طریق ایجاد تله-هایی<sup>(۱۴)</sup> در باند انرژی پلیمر، منجر به کاهش فاصله‌ی تونل‌زنی

**جدول ۲.** نتایج حاصل از شبیه‌سازی آستانه‌ی گذر الکتریکی (EPT) قبل از پرتودهی برای کامپوزیت PMMA-CNT در مقایسه با داده‌های تجربی دیگران

منبع	EPT (wt%)	روش
[۲۰]	۰٫۱۷	تجربی
[۲۱]	۰٫۳۳	تجربی
[۲۲]	۰٫۳۷	تجربی
[۲۳]	۰٫۳۹	تجربی
[۲۴]	۰٫۵	تجربی
[۲۵]	۰٫۷	تجربی
<b>کار حاضر</b>	<b>۰٫۱۹</b>	<b>شبیه‌سازی</b>

شکل ۴، چگالی جریان الکتریکی برحسب آهنگ دز را برای کامپوزیت PMMA-CNT، با  $0.17\%$  وزنی نانولوله‌ی کربن نمایش می‌دهد (خطای مربوط به محاسبات نرم‌افزار COMSOL بین  $2\%$  تا  $2.8\%$  است). همان‌گونه که از شکل پیداست، با افزایش آهنگ دز از  $3$  به  $12 \text{ mGy/s}$ ، چگالی جریان به شکل نسبتاً خطی افزایش می‌یابد و برازش خطی این نمودار مؤید مطلب فوق است. در توجیه علل فیزیکی این پدیده می‌توان گفت که آهنگ افزایش دما یا معادل آن آهنگ دز در کامپوزیت PMMA-CNT منجر به افزایش مشارکت ترازهای عمیق‌تر در فرایند رسانش جهشی در کامپوزیت مذکور می‌شود.

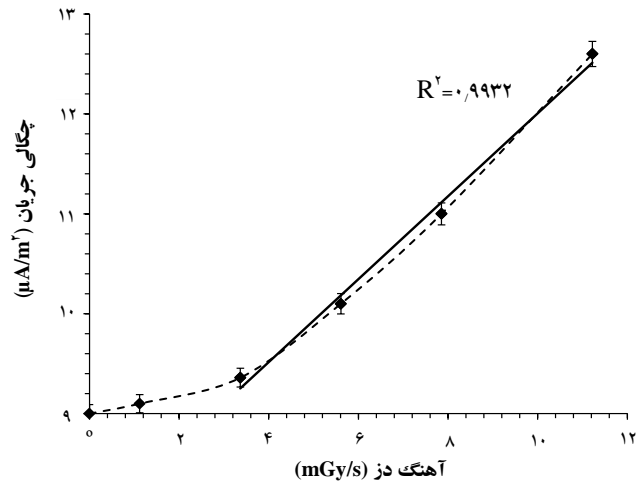
در ادامه، مقدار دز جذبی از طریق حاصل ضرب آهنگ دز در مدت زمان تابش دهی (۲ min) محاسبه شد. شکل ۵، تغییر نسبی چگالی جریان الکتریکی برحسب دز برای کامپوزیت PMMA-CNT با درصد‌های وزنی متفاوت (خطا از  $2\%$  تا  $3.7\%$ ) را نمایش می‌دهد. چنان‌چه ملاحظه می‌شود، چگالی جریان در کامپوزیت  $0.17\%$  (درست قبل از آستانه‌ی گذر الکتریکی) تا دز جذبی  $400 \text{ mGy}$  نسبت به جریان تاریک با شیب ملایمی افزایش، و پس از آن تا دز جذبی حدود  $1350 \text{ mGy}$  با شیب تندتری افزایش، و در دزهای بالاتر از آن جریان

با توجه به افزایش پیوسته‌ی جریان الکتریکی با دز جذبی در گستره‌ی میلی‌گری تا گری، به نظر می‌رسد استفاده از این ماده برای دزیمتری در دزهای پایین مناسب باشد. برای کامپوزیت حاوی  $0.1 \text{ g}$  و  $0.1\%$  وزنی از نانولوله (درست در آستانه‌ی گذر الکتریکی) تا دز جذبی حدود  $1000 \text{ mGy}$ ، چگالی جریان نسبت به جریان تاریک با شیب ملایمی افزایش، و پس از آن تا دز جذبی حدود  $2000 \text{ mGy}$  با شیب تندتری افزایش می‌یابد و در دزهای بالاتر از آن جریان اشباع می‌شود. این نتیجه نشان می‌دهد که افزودن نانولوله‌ی کربن به کامپوزیت، ضمن افزایش محدوده‌ی دزیمتری، کاهش اندک حساسیت<sup>(۱۶)</sup> و قدرت تفکیک<sup>(۱۷)</sup> دزیمتر را نیز به دنبال دارد.

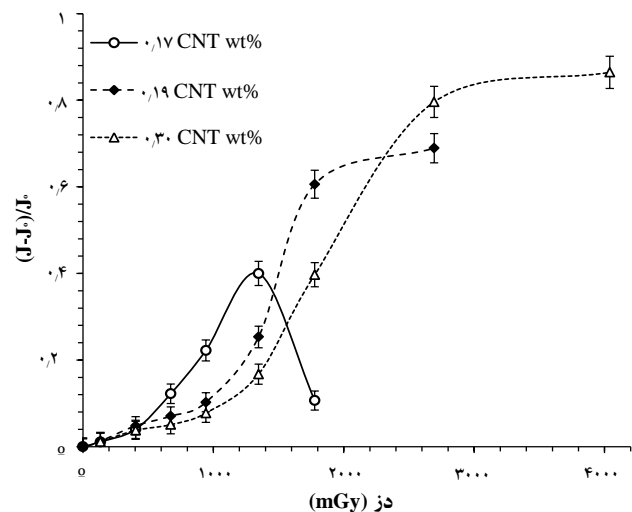
هم‌چنین برای کامپوزیت حاوی  $0.3\%$  وزنی، نانولوله کربن (بالاتر از آستانه‌ی گذر الکتریکی)، پاسخ دز این کامپوزیت در ناحیه‌ی  $1000 \text{ mGy}$  تا  $2700$  به صورت خطی است و نشان می‌دهد که در این کسر وزنی، ناحیه‌ی دزیمتری گسترش بیش‌تری پیدا کرده است. مقایسه‌ی پاسخ دز کامپوزیت‌های  $0.1 \text{ g}$  و  $0.3 \text{ g}$  و  $0.1\%$  و  $0.3\%$  وزنی نشان می‌دهد که شیب منحنی‌ها با افزایش درصد نانولوله کم می‌شود. این پدیده احتمالاً مربوط به افزایش جریان تاریک در کامپوزیت  $0.3 \text{ g}$  و  $0.3\%$  وزنی نسبت به  $0.1 \text{ g}$  و  $0.1\%$  وزنی باشد. بنابراین، می‌توان گفت که کسر وزنی نانولوله‌های کربن در بستر پلیمر، عاملی مهم در تعیین محدوده‌ی دزیمتری این گونه مواد به شمار می‌رود. از آن‌جا که ساز و کار ترابرد بار الکتریکی در کامپوزیت‌های پلیمر-نانولوله‌ی کربن از طریق تونل‌زنی و جهش الکترون‌هاست و با توجه به این که در ناحیه‌ی گذار، غلظت CNTها به گونه‌ای است که فاصله‌ی تونل‌زنی (به کم‌تر از  $1/8 \text{ nm}$ ) کاهش می‌یابد [۲۶]، با تابش‌دهی کامپوزیت‌های مذکور به علت اندرکنش‌های فوتوالکتریک، پراکندگی کامپتون و تولید جفت، حامل‌های بار بیش‌تری به وجود آمده است که با به‌کارگیری ولتاژی مناسب و جلوگیری از بازترکیب الکترون-حفره‌ها، انتظار می‌رود رسانندگی الکتریکی این کامپوزیت‌ها افزایش یابد.

در مورد علت استفاده از ولتاژ پایین ( $3 \text{ V}$ ) در محدوده‌ی جریان مستقیم (DC)، دلایل گوناگونی می‌توان بیان کرد. اول این که در سیستم‌های نامنظم، رسانش جهشی الکترون‌ها در حالت DC از حالت متناوب (AC) بیش‌تر است [۲۷]. در حالت

کاهش می‌یابد. از آن‌جا که در نانو کامپوزیت‌های پلیمر-نانولوله‌ی کربن با درصد‌های وزنی کوچک‌تر از آستانه‌ی گذر الکتریکی، تعداد شبکه‌های گذرپذیر<sup>(۱۵)</sup> گسترده پایین‌اند، بنابراین در اثر تابش‌دهی، حامل‌های بار در کامپوزیت انباشته می‌شود، میدان الکتریکی داخلی مربوط به الکترون-حفره‌های حاصل از یونش تابش یون‌ساز افزایش می‌یابد، در نتیجه، تضعیف میدان الکتریکی خارجی و به دنبال آن کاهش چگالی جریان الکتریکی کامپوزیت رخ می‌دهد.



**شکل ۴.** پاسخ کامپوزیت PMMA-CNT  $0.17 \text{ wt}\%$  در آهنگ‌های دز مختلف (خطای بین  $2\%$  تا  $2.8\%$ ) در ولتاژ ثابت  $3 \text{ V}$ . برازش خطی، مؤید خطی بودن پاسخ دزیمتر در محدوده‌ی آهنگ دز  $3$  تا  $12 \text{ mGy/s}$  است.



**شکل ۵.** مقایسه‌ی تغییرات نسبی چگالی جریان الکتریکی بر حسب دز برای کامپوزیت PMMA-CNT حاوی درصد‌های وزنی مختلف نانولوله‌ی کربن در ولتاژ ثابت  $3 \text{ V}$  به همراه خطای نسبی ( $2\%$  تا  $3.7\%$ ).



۴۰۰ mGy تا حدود ۳ Gy را می‌توان عاملی مثبت به منظور استفاده از ماده‌ی کامپوزیتی فوق با کاربردهای دزیتری در گستره‌ی دز تشخیصی و درمانی تلقی نمود.

### پی‌نوشت‌ها

1. Carbon Nanotube
2. Single Wall Carbon Nanotube
3. Polyvinylidene Fluoride
4. Percolation
5. Polymethyl Methacrylate-Carbon Nanotube
6. Variable Range Hopping
7. Cross-Sectional view of Randomly Oriented CNTs
8. Excluded Volume Approach
9. Aspect Ratio
10. Ultrasonication
11. Dark Current
12. Electrical Percolation Threshold
13. Hopping
14. Traps
15. Percolative Networks
16. Sensitivity
17. Resolution
18. Dielectric Strength
19. Joule Heating
20. Electroforming

AC به واسطه‌ی متغیر بودن سمت‌گیری دوقطبی‌های الکتریکی، اختلاف انرژی و فاصله‌ی بین حالات جای‌گزیده افزایش می‌یابد، در نتیجه مطابق رابطه‌ی میلر-آبراهام [۲۸]، آهنگ جهش الکترون‌ها و در نتیجه رسانش جهشی در حالت AC نسبت به حالت DC کاهش خواهد یافت. دوم این‌که به علت ضخامت نازک کامپوزیت PMMA-CNT و کم بودن فاصله‌ی بین الکترودهای ولتاژ ( $10 \mu\text{m}$ )، استفاده از ولتاژ پایین باعث جلوگیری از پدیده‌ی فروشکست الکتریکی در فیلم نازک (دی-الکتریک) می‌شود [۲۹، ۳۰]. شایان ذکر است که قدرت دی‌الکتریک<sup>(۱۸)</sup> PMMA برابر  $10^9 \text{ V/m}$  است [۳۱]. در واقع ولتاژ به کار رفته باید کوچک‌تر از ولتاژ فروشکست، و به اندازه‌ای باشد تا بتواند از بازترکیب الکترون-حفره‌های ایجاد شده در اثر تابش‌دهی جلوگیری کند. فروشکست الکتریکی در چنین کامپوزیت‌هایی به عواملی از قبیل شدت میدان الکتریکی، اختلاف پتانسیل و فاصله‌ی بین الکترودها بستگی دارد. هم‌چنین در ولتاژهای بالا، گرمادهی ژول<sup>(۱۹)</sup> باعث ورود ذرات موجود در الکترودها (مانند نقره) به لایه‌ی پلیمری دزیتر تابشی می‌شود، که این اثر را الکتروفورمینگ<sup>(۲۰)</sup> می‌نامند [۵]. در این فرایند، با افزایش ولتاژ و به دنبال آن افزایش گرمادهی ژول، مهاجرت ذرات فلزی الکترودها به فیلم نازک افزایش می‌یابد، در نتیجه احتمال فروشکست الکتریکی بیش‌تر می‌شود که در صورت رخ دادن این پدیده، دزیتری دیگر امکان‌پذیر نخواهد بود.

### ۴. نتیجه‌گیری

در شبه‌سازی حاضر، مقدار آستانه‌ی گذر کامپوزیت PMMA-CNT برابر ۰/۱۹٪ وزنی پیش‌بینی شده است که هم‌خوانی قابل‌قبولی با سایر نتایج تجربی منتشر شده دارد. یکی از عوامل مهم در بررسی ویژگی‌های دزیتری ماده کامپوزیتی PMMA-CNT، محدوده‌ی دزیتری است، جایی که با افزایش آهنگ دز، پاسخ دزیتر یعنی جریان الکتریکی افزایش می‌یابد. نتایج نشان داد که افزودن نانولوله‌ی کربن به کامپوزیت، ضمن افزایش محدوده‌ی دزیتری، باعث کاهش اندک حساسیت و قدرت تفکیک دزیتر می‌شود. بنابراین با کنترل مقدار کسر وزنی نانولوله‌های کربن در بستر پلیمر، می‌توان محدوده‌ی دزیتری را تعیین نمود. خطی بودن پاسخ دز در این نمونه‌ها از





## مراجع

- [1] S. Iijima, Helical microtubules of graphitic carbon, *Nature* **354** (1991) 56-58.
- [2] T. Durkop, S.A. Getty, E. Cobas, M.S. Fuhrer, Extraordinary Mobility in Semiconducting Carbon Nanotubes, *Nano letters* **4** (2004) 35-39.
- [3] Z. Yao, C. Kane, C. Dekker, High-Field Electrical Transport in Single-Wall Carbon Nanotubes, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 2941-2944.
- [4] P.M. Ajayan, O. Stephan, C. Colliex, D. Trauth, Aligned Carbon Nanotube Arrays Formed by Cutting a Polymer Resin—Nanotube Composite, *Science* **265** (1994) 1212-1214.
- [5] O. Korostynska, K. Arshak, D. Morris, A. Arshak, E. Jafer, Radiation-induced changes in the electrical properties of carbon filled PVDF thick films, *Mater. Sci. Eng. B* **141** (2007) 115-120.
- [6] J. Ma, J. Yeow, Effect of percolation on electrical conductivity in a carbon nanotube-based film radiation sensor, Proc. IEEE conf. on Nanotechnology (2008) 259-262.
- [7] E.V. Barrera, R. Wilkins, M. Shofner, M.X. Pulikkathara, R. Vaidyanathan, Functionalized Carbon Nanotube-Polymer Composites and Interaction with Radiation, in: H. William Marsh Rice University, TX (Ed.), US (2010).
- [8] S. Malekie, F. Ziaie, Effective permittivity simulation of Polyethylene-Carbon Nanotube Nano-Composite using Finite Element Method, Annual Physics Conference of Iran, University of Sistan and Baluchestan, Zahedan (2014) 407-410.
- [9] P. Owen, Modelling a Calorimeter for High Dose Rate Brachytherapy, Department of Physics, University of Surrey (2011) 76.
- [10] COMSOL Multiphysics Modeling and Simulation Software, <http://www.comsol.com/products/heat-transfer> (2015).
- [11] S. Malekie, F. Ziaie, A two-dimensional simulation to predict the electrical behavior of carbon nanotube/polymer composites, *J. Polym. Eng.* **37**(2) (2016) 205-210.
- [12] I. Balberg, C.H. Anderson, S. Alexander, N. Wagner, Excluded volume and its relation to the onset of percolation, *Phys. Rev. B*, **30** (1984) 3933-3943.
- [13] A. Belashi, A Dissertation entitled Percolation Modeling in Polymer Nanocomposites (2011).
- [14] K. Jeon, L. Lumata, T. Tokumoto, E. Steven, J. Brooks, R.G. Alamo, Low electrical conductivity threshold and crystalline morphology of single-walled carbon nanotubes-high density polyethylene nanocomposites characterized by SEM, Raman spectroscopy and AFM, *Polymer* **48** (2007) 4751-4764.
- [15] S. Malekie, F. Ziaie, Study on a novel dosimeter based on polyethylene-carbon nanotube composite, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, *Detectors and Associated Equipment*, **791** (2015) 1-5.
- [16] W.D. Callister, Fundamentals of Materials Science and Engineering, fifth ed., John Wiley & Sons, Inc., The University of Utah (2001).
- [17] S. Luo, Processing-Structure-Property Relationships Of Carbon Nanotube And Nanoplatelet Enabled Piezoresistive Sensors, The Florida State University, Electronic Theses, Treatises and Dissertations (2013) Paper 7478.
- [18] I. Tavman, Y. Aydogdu, M. Kök, A. Turgut, A.E. a, Measurement of heat capacity and thermal conductivity of HDPE/expanded



- graphite nanocomposites by differential scanning calorimetry, *Archives of Materials Science and Engineering* **50** (2011) 5.
- [19] N. Apsley, H.P. Hughes, Temperature- and field-dependence of hopping conduction in disordered systems, *Philos. Mag.* **3** (1974) 963.
- [20] V. Skákalová, U. Dettlaff-Weglikowska, S. Roth, Electrical and mechanical properties of nanocomposites of single wall carbon nanotubes with PMMA, *Synthetic Met.* **152** (2005) 349-352.
- [21] J.M. Benoit, B. Corraze, S. Lefrant, W.J. Blau, P. Bernier, O. Chauvet, Transport properties of PMMA-Carbon Nanotubes composites, *Synthetic Met.* **121** (2001) 1215-1216.
- [22] F. Du, J.E. Fischer, K.I. Winey, Effect of nanotube alignment on percolation conductivity in carbon nanotube/polymer composites, *Phys. Rev. B*, **72** (2005) 121404.
- [23] F. Du, R.C. Scogna, W. Zhou, S. Brand, J.E. Fischer, K.I. Winey, Nanotube Networks in Polymer Nanocomposites: Rheology and Electrical Conductivity, *Macromolecules* **37** (2004) 9048-9055.
- [24] J. Dai, Q. Wang, W. Li, Z. Wei, G. Xu, Properties of well aligned SWNT modified poly (methyl methacrylate) nanocomposites, *Mater. Lett.* **61** (2007) 27-29.
- [25] O. Regev, P.N.B. ElKati, J. Loos, C.E. Koning, Preparation of Conductive Nanotube-Polymer Composites Using Latex Technology, *Adv. Mater.* **16** (2004) 248-251.
- [26] C. Li, E.T. Thostenson, T.-W. Chou, Dominant role of tunneling resistance in the electrical conductivity of carbon nanotube-based composites, *Appl. Phys. Lett.* **91** (2007) 223114.
- [27] L.J. Huijbregts, Charge transport and morphology in nano fillers and polymer nanocomposites, Technische Universiteit Eindhoven, Eindhoven (2008).
- [28] M. Pollak, B. Shklovskii, Hopping Transport in Solids, Elsevier Science, Amsterdam (1991).
- [29] T. Blythe, D. Bloor, Electrical Properties of Polymers, 2nd ed., Cambridge University Press (2005).
- [30] V. Sgobba, D.M. Guldi, Carbon nanotubes-electronic/electrochemical properties and application for nanoelectronics and photonics, *Chem. Soc. Rev.* **38** (2009) 165-184.
- [31] S.F. Lyuksyutov, R.A. Vaia, P.B. Paramonov, S. Juhl, L. Waterhouse, R.M. Ralich, G. Sigalov, E. Sancaktar, Electrostatic nanolithography in polymers using atomic force microscopy, *Nat. Mater.* **2** (2003) 468-472.