



ساخت دزیمتر ترمولومینسانس کلسیم فلورید و بررسی تأثیر ناخالصی Dy بر خواص دزیمتری آن

مهدی غلامپور^{*۱}، جعفر قیصری^۱، غضنفر میرجلیلی^۱، محمدعلی شفائی^۱، لیلا شکاری^۱، علیرضا معینی^۱، ارزنگ شاهور^۵

-۱- دانشکده فیزیک، دانشگاه یزد، صندوق پستی: ۸۹۱۹۵-۷۴۱

-۲- گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه افسری امام علی (ع)، کد پستی: ۱۳۱۲۸۹۳۴۷۱

-۳- پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۹۱۲۵-۳۸۹

-۴- گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه تربیت مدرس، صندوق پستی: ۱۴۱۱۵-۳۱۷

-۵- آزمایشگاه دزیمتری استاندارد (SSDL)، پژوهشکده تحقیقات کشاورزی، پزشکی و صنعتی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۳۱۴۸۵-۴۹۸

چکیده: در این کار تحقیقاتی، نمونه‌های کلسیم فلورید، به شکل قرص، تحت تابش گامای چشمهدی کبالت قرار داده شد و بلا فاصله شدت نوردهی توسط دستگاه TLD-خوان تعیین گردید. قله‌های منحنی درخشش در دماهای تقریباً برابر ۱۳۵، ۱۷۰، ۲۶۰ و ۳۷۰ درجه‌ی سانتی‌گراد مشاهده شد. قله‌ی اصلی در دمای ۲۶۰ درجه‌ی سانتی‌گراد قرار دارد. در این پژوهش حساسیت کلسیم فلورید خالص و تأثیر ناخالصی دیسپروسیم (Dy) بر آن بررسی و با مقدار ۲ درصد مولی دیسپروسیم بیش ترین میزان حساسیت مشاهده شد. حساسیت این دزیمتر حدود ۵ برابر TLD-100 است که با افروden ناخالصی دیسپروسیم به حدود ۱۸ برابر رسید. میزان محوشدگی در دمای اتاق در طول یک روز، دو روز و ۵۰ ساعت، به ترتیب، ۱۳، ۳۶ و ۵۰ درصد تعیین گردید. پس از ۱۰ بار تکرار پرتودهی، و متعاقب آن انجام عملیات خواندن و بازپخت تحت شرایط معین، تکرار پذیری این دزیمتر مورد تأیید قرار گرفت.

واژه‌های کلیدی: کلسیم فلورید، دزیمتر ترمولومینسانس، دیسپروسیم، منحنی درخشندگی، حساسیت، محوشدگی

Preparation of CaF₂ Thermoluminescence Dosimeter and Investigating of the Influence of Dy Impurity in it's Dosimetric Properties

M. Gholampoor^{*1,2}, J. Gheisari¹, Gh. Mirjalili^{1,3}, M.A. Shafaie¹, L. Shekari⁴, A.R. Moini¹, A. Shahvar⁵

1- Department of Physics, Faculty of Science, Yazd University, P.O. Box: 89195-741, Yazd-Iran

2- Department of Physics, Faculty of Science, Imam Ali Military University, Postcod: 1317893471, Tehran-Iran

3- Radiation Application Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O. Box: 89175-389, Taft-Iran

4- Department of Physics, Faculty of Science, Tarbiat Modares University, P.O. Box: 14115-317, Tehran-Iran

5- Secondary Standard Dosimetry Laboratory (SSDL), Agricultural, Medical and Industrial Research School,

Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O. Box: 31485-498, Karaj-Iran

Abstract: In this study, CaF₂ pellet samples were prepared and its thermoluminescence (TL) properties were investigated after gamma irradiation. The TL glow curve of the CaF₂ pellet has four peaks at around 135, 170, 260 and 370°C for the heating rate of 10°C/S. The main peak occurs at 260°C. The sensitivity of CaF₂ and Dy doped CaF₂ were examined. The observed TL sensitivity of the prepared CaF₂ pellet is about five times than that of TLD-100. The sensitivity of the Dy doped CaF₂ is approximately 18 times higher than that of TLD-100. The fading is approximately 13% in one day, 36% in two days and 50% in 500 hours. These examinations repeated for 10 times and all the results were found to be consistent. These properties make the CaF₂ pellets a useful candidate for γ-ray irradiation dosimetry applications.

Keywords: Calcium Fluoride, Thermoluminescence Dosimeter, Dy, Glow Curve, Sensitivity, Fading

*email: mahdi.gholampoor@gmail.com

تاریخ دریافت مقاله: ۸۷/۱۲/۱۱ تاریخ پذیرش مقاله: ۸۸/۷/۲۷



۱- مقدمه

قرص‌های تهیه شده ۶ میلی‌متر (شکل ۱)، ضخامت آن‌ها

۰,۹ میلی‌متر و وزن آن‌ها ۰,۰۵۵ گرم بود.

آنالیز قرص‌ها توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) XL30 ساخت شرکت فیلیپس هلند انجام شد. قرص‌های تهیه شده در دماهای مختلف در کوره قرار گرفته و سخت شدن^(۵) قرص‌ها بررسی شد.

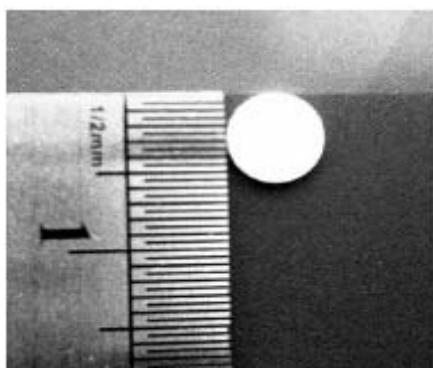
کوره‌ی ۲ لیتری استفاده شده در این پژوهش، از قابلیت افزایش دما تا ۱۲۰۰ درجه‌ی سانتی‌گراد و آهنگ گرمایش از ۲۰ تا ۱۰۰ درجه‌ی سانتی‌گراد بر ثانیه برخوردار بود. حداکثر میزان خطا در اندازه‌گیری دما ۲۰ درجه‌ی سانتی‌گراد بود.

در مرحله‌ی بعدی قرص‌های حرارت دیده، تا دز ۰,۳۷ گری در معرض پرتو گاما چشمۀ C0^۶ قرار گرفتند. سپس قرص‌ها توسط TLD خوان مجارستانی قابل کنترل از طریق کامپیوتر خوانده شدند. قسمت ثبت منحنی درخشش با آهنگ کاهش ۱ تا ۲۰ درجه‌ی سانتی‌گراد بر ثانیه قابل برنامه‌ریزی بود.

TLD خوان قابلیت خواندن نمونه‌های به شکل قرص، میله‌ای و پودر را داشت. پس از خواندن، بازپخت قرص‌ها به منظور استفاده‌ی مجدد آن‌ها، در کوره انجام شد.

۳- نتایج و بحث

درصد وزنی فلوئور به کلسیم در قرص‌ها ۵۷,۳۷٪: ۴۰,۲۳٪ بود که مجموعاً ۹۷,۶ درصد وزن ماده است (جدول ۱). درصد اتمی فلوئور به کلسیم ۵۹,۱۵٪: ۳۹,۰۴٪ بود که مجموعاً ۹۸,۱۹٪ درصد اتم‌های ماده می‌باشد. دیگر عناصر موجود در ماده شامل درصد کمی از سدیم، مس، آلومینیم و پتاسیم بود. جدول ۱ میزان این ناخالصی‌ها را ارایه می‌دهد. ماده‌ی مورد تحقیق فاقد آهن و سریم بود، در صورتی که در یک گرم از کلسیم فلورید طبیعی صدها میکروگرم از این دو ماده وجود دارد [۲].



شکل ۱- قرص CaF₂ تهیه شده.

نورده‌ی بر اثر تحریک گرمایی (ترمولومینسانس) مبحث بسیار گسترده‌ای در دزیمتری پرتوها به شمار می‌رود.

میزان دز جذبی پرتو از طریق شدت نور گسیل شده بر اثر تحریک گرمایی ماده اندازه‌گیری می‌شود. مواد مختلفی دارای این ویژگی هستند، یکی از این مواد کلسیم فلورید است. ماده‌ی ترمولومینسانس کلسیم فلورید به صورت طبیعی در طبیعت یافت می‌شود و بعد از فرایندهایی به صورت پودر خالص قابل تهیه است. مطالعاتی در مورد ماده‌ی ترمولومینسانس کلسیم فلورید طبیعی انجام شده است.

موضوع اصلی این تحقیق، ساخت دزیمتر ترمولومینسانس کلسیم فلورید و بررسی قله‌های منحنی درخشش^(۱) آن است.

خصوصیات کلسیم فلورید طبیعی به عنوان دزیمتر از قبیل محوشدگی^(۲)، قله‌های منحنی درخشش آن، بازیخت^(۳)، پاسخ دز^(۴) به پرتو گاما توسط مک‌کیور، موسکویچ و تاوند (۱۹۹۵) مورد بحث و بررسی قرار گرفته است [۱].

خواص دزیمتری کلسیم فلورید با نسبت درصد فلوئور به کلسیم ۵۱,۳۳٪: ۴۸,۶۷٪ توسط وینکیر بررسی و نشان داده شده است که با تغییر درصد ترکیب کلسیم و فلوئور نتایج متفاوتی از خواص دزیمتری حاصل می‌شود. تغییرات پاسخ دز در الکترون‌ها و طول موج‌های گسیلی و منحنی درخشش کلسیم فلورید طبیعی معدن‌های مادرید اسپانیا توسط منریک و آنگولو (۲۰۰۹) بررسی شده است [۳]. در این پژوهش قله‌های درخشش متفاوتی در پاسخ دز کلسیم فلورید برای الکترون‌ها مشاهده شده است. مقایسه‌ی خاصیت دزیمتری محیطی و فردی CaF₂:NaCl و TLD-100 وابستگی شدت نور گسیلیده به انرژی فوتون تابشی توسط جومارس (۲۰۰۳) انجام شده است [۴]. روی خاصیت نورده‌ی این ماده‌ی طبیعی و پیچیده بودن فرایند محوشدگی تحقیقاتی توسط اگاندار (۲۰۰۴) انجام شده است [۵].

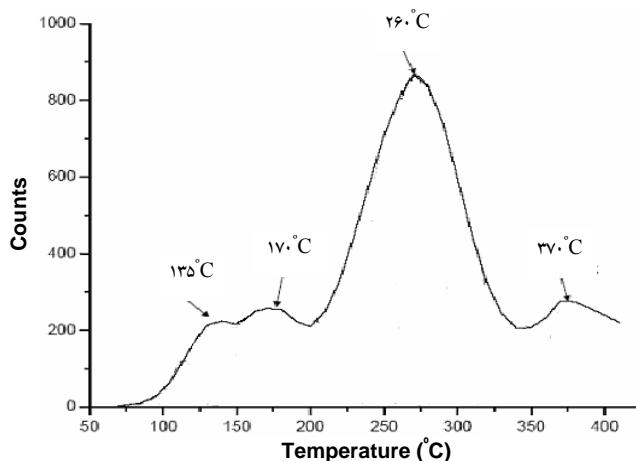
۲- مواد و روش‌ها

پودر کلسیم فلورید و دیسپروسیم مورد استفاده در این تحقیق از شرکت مرک تهیه شد. Dy با درصدهای مختلف به صورت فیزیکی با کلسیم فلورید ترکیب گردید. با طراحی و تهیه‌ی یک قالب از جنس فولاد خشکاین، ماده‌ها توسط دستگاه پرس سرد، که تا فشار ۱۵ تن قابل تنظیم بود، به قرص تبدیل شدند. قطر



جدول ۱- درصد وزنی و اتمی ماده‌ی مورد تحقیق.

عنصر	دروصد وزنی	دروصد اتمی
F	۴۰,۲۳	۵۹,۱۵
Ca	۵۷,۳۷	۳۹,۰۴
Na	۰,۶۱	۰,۴۱
Sr	۰,۳۰	۰,۰۹
Cr	۰,۱۱	۰,۰۶
Al	۰,۹۹	۱,۰۲
Cu	۰,۳۸	۰,۲۲



شکل ۲- منحنی درخشش نمونه‌ی کلسیم فلورید خالص به دست آمده، با استفاده از دستگاه TLD خوان. قله‌ی اصلی تقریباً در دمای 260°C قرار دارد.
[آهنگ گرمایش $\text{S}/\text{C} = 10^{\circ}\text{C}/\text{S}$.].

حساسیت دزیمتر کلسیم فلورید مورد بررسی حدود ۵ برابر TLD-۱۰۰ است.

هم‌زمان با مراحل بالا، Dy با کلسیم فلورید ترکیب و تحت همان شرایط، قرص‌های ساخته شده و در معرض پرتو قرار داده شدند. همان‌طور که شکل‌های ۳ تا ۸ و جدول ۳ نشان می‌دهند با تغییر درصد مولی دیسپروسیم از ۰,۵ تا ۲ حساسیت قرص‌ها افزایش یافه و در ۲ درصد مولی به بیشینه مقدار خود می‌رسد و سپس با افزایش درصد مولی دیسپروسیم به ۲,۵ و ۳ به شدت کاهش می‌یابد، به طوری که، در شکل ۹ به خوبی مشاهده می‌شود با ۱۳ درصد مولی از دیسپروسیم شدت نوردهی کم‌تر از شدت نوردهی برای کلسیم فلورید خالص است.

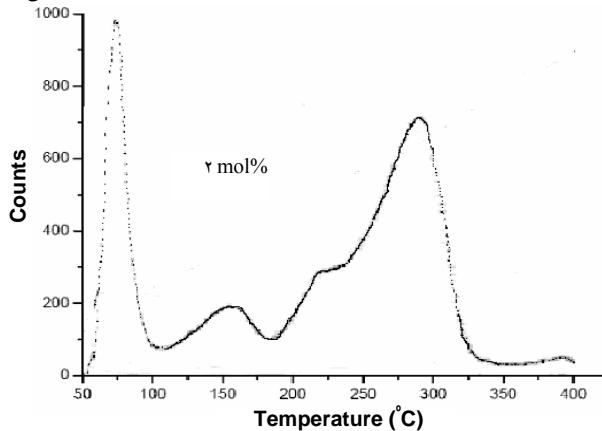
میزان حساسیت برای کلسیم فلورید ترکیب شده با ۲ درصد مولی از Dy حدود ۱۸ برابر TLD-۱۰۰ است (جدول ۲).

میزان تبخیر در دماهای مختلف بررسی شد. در دمای 70°C تا 90°C درجه‌ی سانتی گراد میزان تبخیر در حدود $0,03$ درصد و قابل چشم‌پوشی بود (جدول ۲). بهترین دما و مدت زمان لازم برای سینترشدن، به ترتیب، 80°C درجه‌ی سانتی گراد و ۲ ساعت بود. قرص‌ها به مدت ۴ دقیقه یعنی تا دز تقریباً برابر $1,5\text{Gy}$ تحت پرتو گاما قرار گرفتند و بلا فاصله با TLD خوان از قبل تنظیم شده، خوانده شدند. تنظیم TLD خوان به صورت زیر انجام شد: پیش گرمایش به مدت ۱۰ ثانیه در 100°C درجه‌ی سانتی گراد، گرمایش با آهنگ $10^{\circ}\text{C}/\text{S}$ درجه‌ی سانتی گراد بر ثانیه تا 400°C درجه‌ی سانتی گراد، سپس گرمایش به مدت ۱۰ ثانیه در 400°C درجه، و با آهنگ سرمایش $10^{\circ}\text{C}/\text{S}$ درجه بر ثانیه.

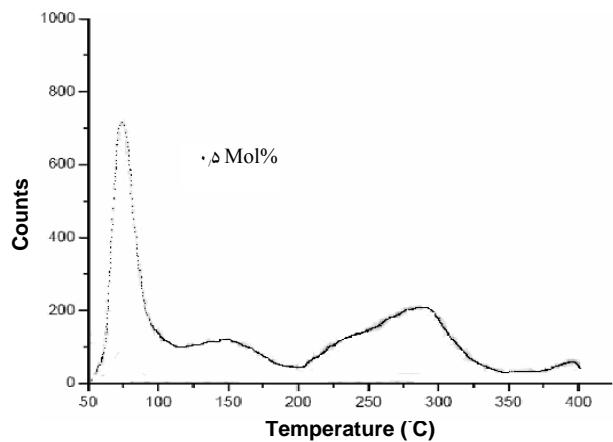
قله‌های منحنی درخشش مشاهده شده برای کلسیم فلورید تقریباً در دماهای 135°C ، 170°C و 260°C درجه‌ی سانتی گراد قرار داشتند. سه قله‌ی اول برای کلسیم فلورید طبیعی رانیارکو و همکارانش [۳]، به ترتیب، در دماهای 115°C ، 205°C و 310°C درجه‌ی سانتی گراد، و سامودرالوار و همکارانش [۱]، به ترتیب، در دماهای 110°C ، 200°C و 310°C درجه‌ی سانتی گراد گزارش کردند. قله‌ی اصلی ماده‌ی مورد بررسی در 260°C قرار دارد که این توسط جاحد خانیکی نیز گزارش شده است [۴] (شکل ۲). از مقایسه‌ی این نتایج، تفاوت کلسیم فلورید مورد مطالعه با کلسیم فلورید طبیعی مشخص می‌شود و می‌توان وجود ناخالصی در کلسیم فلورید طبیعی (آهن و سریم) را دلیل بالاتر رفتن قله‌ی اصلی در منحنی درخشش کلسیم فلورید طبیعی دانست. البته نداشتن شرایط آزمایشگاهی کاملاً استاندارد بی‌تأثیر نیست.

حساسیت S برابر است با سطح زیر نمودار ارایه شده توسط TLD خوان تقسیم بر دز تابشی داده شده برای کلسیم فلورید. (دستگاه TLD خوان سطح زیر نمودار را با تعداد شمارش، counts نشان می‌دهد):

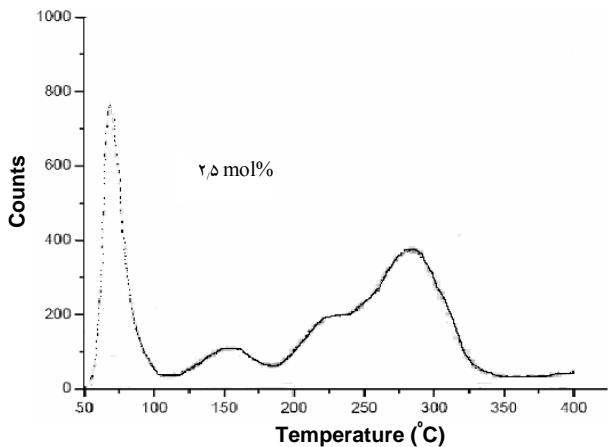
$$S = \frac{\text{Counts}}{\text{Dose}} = \frac{25071}{1.5} = 16714 \quad (1)$$



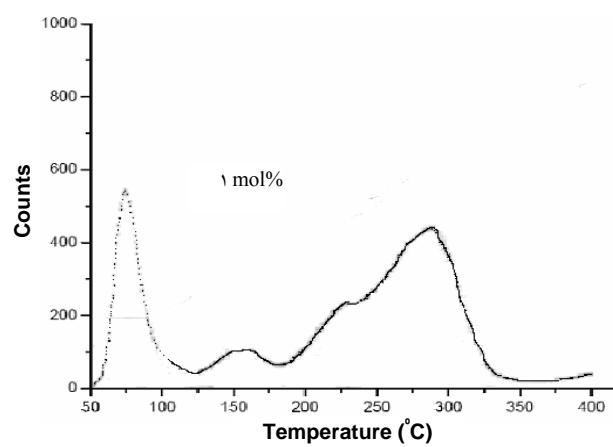
شکل ۶- منحنی درخشش ترکیب کلسیم فلورید با ۲ درصد مولی از Dy، به دست آمده با استفاده از دستگاه TLDخوان. قله‌ها تقریباً در دماهای ۱۵۵، ۲۲۵ و ۲۹۵°C مشاهده می‌شوند. [آنگ گرمایش S/C ۱۰، ۱۰°C در ۱۰۰°C].



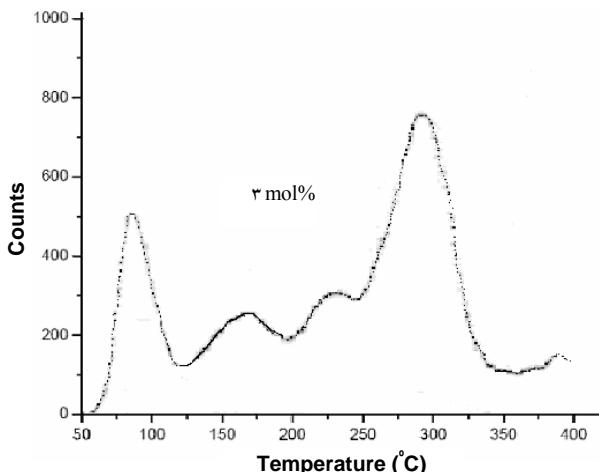
شکل ۳- منحنی درخشش ترکیب کلسیم فلورید با ۰.۵ درصد مولی از Dy، به دست آمده با استفاده از دستگاه TLDخوان. قله‌ها تقریباً در ۱۵۵، ۲۲۵ و ۲۹۵°C مشاهده شده‌اند. [آنگ گرمایش S/C ۱۰، ۱۰°C در ۱۰۰°C].



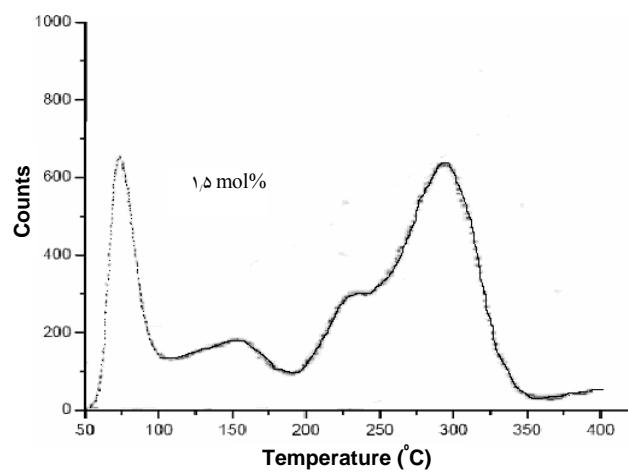
شکل ۷- منحنی درخشش ترکیب کلسیم فلورید با ۲.۵ درصد مولی از Dy، به دست آمده با استفاده از دستگاه TLDخوان. دماهای نظیر قله‌ها عبارت‌اند از تقریباً ۱۵۵، ۲۲۵، ۲۹۵°C و ۱۰°C/S. [آنگ گرمایش ۱۰، ۱۰°C در ۱۰۰°C].



شکل ۴- منحنی درخشش ترکیب کلسیم فلورید با ۱ درصد مولی از Dy، به دست آمده با استفاده از دستگاه TLDخوان. قله‌ها تقریباً در ۱۵۵، ۲۲۵ و ۲۹۵°C مشاهده شده‌اند. [آنگ گرمایش S/C ۱۰، ۱۰°C در ۱۰۰°C].



شکل ۸- منحنی درخشش ترکیب کلسیم فلورید با ۳ درصد مولی از Dy، به دست آمده با استفاده از دستگاه TLDخوان. دماهای متناظر با قله‌ها تقریباً ۱۵۵، ۲۲۵ و ۲۹۵°C می‌باشند. [آنگ گرمایش S/C ۱۰، ۱۰°C در ۱۰۰°C].



شکل ۵- منحنی درخشش ترکیب کلسیم فلورید با ۱.۵ درصد مولی از Dy، به دست آمده با استفاده از دستگاه TLDخوان. قله‌ها تقریباً با دماهای ۱۵۵، ۲۲۵ و ۲۹۵°C متناظراند. [آنگ گرمایش S/C ۱۰، ۱۰°C در ۱۰۰°C].

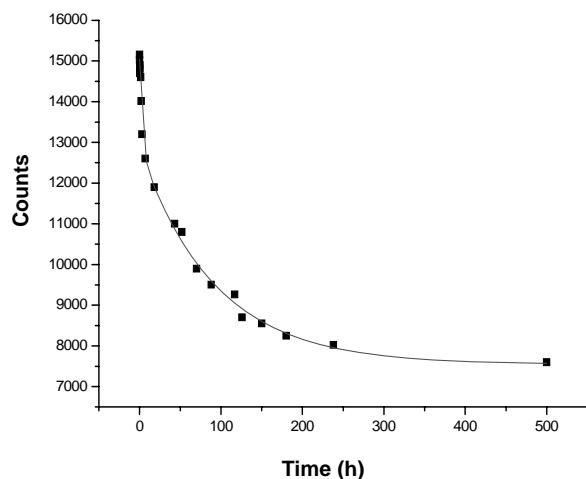


جدول ۳- حساسیت کلسیم فلورید ترکیب شده با Dy.

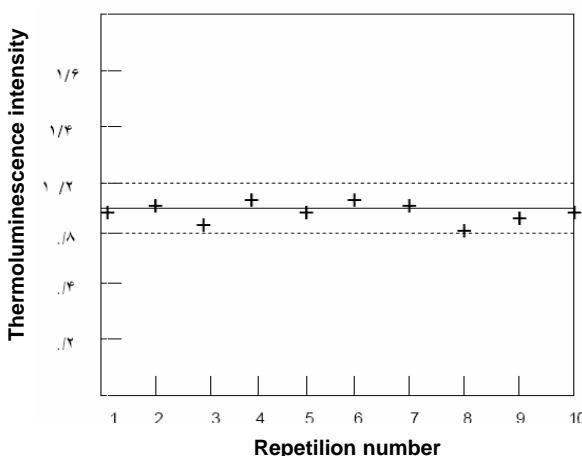
درصد ترکیب	Dose (Gy)	سطح زیر منحنی درخشش (Count)	حساسیت (S)	حساسیت نسبت به پرتو گاما (γ) TLD-100
۰,۵	۱,۵	۴۵۵۲۱	۳۰۳۴۷	~ ۹ برابر
۱	۱,۵	۶۰۵۵۱	۴۰۳۶۷	~ ۱۲ برابر
۱,۵	۱,۵	۷۴۰۲۱	۴۹۳۴۷	~ ۱۴,۷ برابر
۲	۱,۵	۹۱۳۴۲	۶۰۸۹۴	~ ۱۸,۲ برابر
۲,۵	۱,۵	۶۸۰۱۸	۴۵۳۴۵	~ ۱۳,۵ برابر
۳	۱,۵	۱۳۵۷۱	۹۰۴۷	~ ۲۷ برابر

کمتر کاهش می‌یابد تا این که قله‌ی 260°C به حالت تقریباً ثابتی می‌رسد. محوشدگی گرمایی منحنی درخشش کلسیم فلورید به این صورت رخ داد: ۱۳٪ در طول یک روز، ۳۶٪ در طول دو روز و ۵۰٪ در خلال ۵۰۰ ساعت. محوشدگی نوری برای این دزیمتر تحت نور مستقیم افزایش یافت. محوشدگی مشاهده شده تحت نور فلئورسان اتفاق در طول یک روز ۳۰٪ و در طول دو روز ۴۷٪ بوده است.

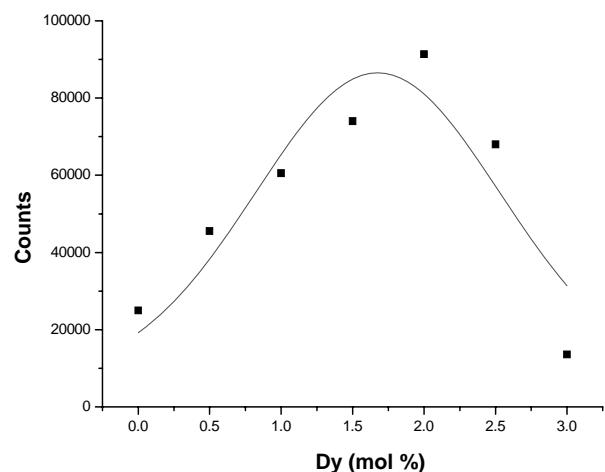
منظور از تکارپذیری خاصیت دزیمتری این است که ماده‌ی دزیمتر بر اثر پرتودهی و بازپختهای مکرر، دچار افت حساسیت نگردد. برای بررسی، عملیات پخت چندین مرتبه روی ماده انجام و رابطه‌ی پاسخ دز با توجه به دز دریافتی مورد ملاحظه قرار می‌گیرد، اگر حساسیت نسبی آن تغییر نکرد ماده دارای خاصیت تکارپذیری است. این عملیات بر روی نمونه‌ای انجام شد که نتایج حاصل از آن در شکل ۱۱ آمده است.



شکل ۱۰- محوشدگی کلسیم فلورید خالص با زمان.



شکل ۱۱- تغییرات شدت نوردهی به صورت تابعی از عملیات پخت تکراری (انحراف میانگین ۸٪ است).



شکل ۹- تغییر شدت نوردهی با تغییر غلظت Dy.

با توجه به منحنی‌های درخشش حاصل از ترکیب‌های مختلف کلسیم فلورید با درصددهای مختلف Dy (شکل‌های ۳ تا ۸)، قله‌های منحنی درخشش در دماهای ۱۵۵، ۲۲۵ و ۲۹۵ درجه‌ی سانتی‌گراد قرار دارند. ارتفاع قله‌ها با مقدار Dy موجود در ترکیب تغییر می‌کنند. ترکیب با ۲ درصد مولی از Dy بلندترین قله‌ها را در میان ترکیب‌های مختلف دارا است.

قرص‌ها به مدت ۲۰ دقیقه در دمای ۴۰۰ درجه‌ی سانتی‌گراد قرار گرفتند تا صفر شوند یعنی، آثار تابش در آن‌ها از بین برود. قرص‌ها سپس در دمای اتفاق (۳۰ درجه‌ی سانتی‌گراد) قرار داده شدند تا سرد شوند. دوباره در همان شرایط قرص‌ها تحت پرتو قرار گرفتند. این بار حدود ۲ دقیقه بعد، عملیات خواندن انجام شد. این مراحل تا ۵۰۰ ساعت در تاریکی تکرار شدند و مشاهده گردید که در زمان‌های اولیه، محوشدگی گرمایی (در دمای ۳۰ درجه‌ی سانتی‌گراد) خیلی سریع رخ می‌دهد و کم کم به حالت تقریباً پایداری می‌رسد (شکل ۱۰). این محوشدگی گرمایی سریع در زمان‌های اولیه از ناپایدار بودن قله‌ی اول (135°C) ناشی می‌شود. بعد از محو شدن این قله، شدت نوردهی



۴- نتیجه گیری

References:

1. S.W.S. McKeever, M. Moscivitch, P.D. Townsend, "THERMOLUMINESCENCE DOSIMETRY MATERIALS: PROPERTIES AND USES," Nuclear Technology Publishing, Ashford, Kent, 74-79, 109-111 (1995).
2. B. Marczevska, P. Bilski, M. Budzanowski, P. Olko, V. Chernov, "Dosimetry properties of Tm-doped single CaF₂ crystals," Radiation Measurements, Vol. 33, 571-576 (2001).
3. J. Manrique, S. Angulo, M.P. Pardo, R.Gastesi, A. Dela Cruz, A. Perez, "Thermoluminescence spectra of natural CaF₂ irradiated by 10MeV electrons," Radiation Measurements, Vol. 41 145-153 (2006).
4. C.C. Guimarães, E.Okuno, "Blind performance testing of personal and environmental dosimeters based on TLD-100 and natural CaF₂: NaCl," Radiation Measurements, Vol. 37 127-132 (2003).
5. F.O. Ogundare, F.A. Balogun, L.A. Hussain, "Kinetic characterization of the thermoluminescence of natural fluorite," Radiation Measurements, Vol. 38, 281–286 (2004).

با مشاهده قله های منحنی درخشش کلسیم فلورید (شکل ۲) در دماهای ۱۳۵، ۱۷۰، ۲۶۰ و ۳۷۰ درجه سانتی گراد، نتیجه می شود که تغییر در درصد ترکیب فلور و کلسیم باعث تغییر در دمای نظری قله ها شده است. بود بعضی از ناخالصی ها مثل آهن و سریم ممکن است دلیل دیگر پایین آمدن دمای نظری قله باشد. همان طور که در شکل ۶ و جدول ۳ مشاهده می شود ترکیب دارای ۲ درصد مولی Dy، بیشترین حساسیت و شدت نوردهی را دارد. نمودار محوشدگی با زمان در شکل ۱۰ نشان می دهد که شدت نوردهی با زمان به سرعت کاهش می یابد. حساسیت نسبت به TLD-100 بالا است و می توان با درجه بندی این دزیمتر، مقادیر دز پایین (در حد میلی گری) را نیز اندازه گیری نمود. با توجه به برخورداری این دزیمتر از خاصیت تکرار پذیری، می توان به دفعات از آن برای دزیمتری استفاده نمود.

تشکر و قدردانی

در پایان از آقای دکتر گرجی و آقایان مهندس منصوری، غفوری و پارسانیان و خانم میرزا جانی که در تهیه و انجام این پژوهش ما را یاری رسانده اند تشکر می نماییم.

پی نوشت ها:

- ۱- Glow Curve
- ۲- Fading
- ۳- Annealing
- ۴- Dose Response
- ۵- Sintering