

Nghiên cứu chế tạo liều kế tương đương mô $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Tm}$ sử dụng trong đo liều xạ trị và đo liều cá nhân

Research on fabrication of tissue-equivalent dosimeter $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Tm}$
for use in radiotherapy dosimetry and personal dosimetry

Trần Ngọc^{a,b*}, Nguyễn Xuân Kha^c, Trần Tiến Vinh^d, Nguyễn Duy Phương^e, Tô Trúc Linh^e
Tran Ngoc^{a,b*}, Nguyen Xuan Kha^c, Tran Tien Vinh^d, Nguyen Duy Phuong^e, To Truc Linh^d

^aViện Nghiên cứu và Phát triển Công nghệ Cao, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

^aInstitute of Research and Development, Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam

^bKhoa Môi trường và Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

^bFaculty of Environment and Natural Science, Duy Tan University, Danang, 550000, Vietnam

^cYDK7 - Khoa Y, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

^cYDK7 - Faculty of Medicine Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam

^dYDK3 - Khoa Y, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

^dYDK3-Faculty of Medicine Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam

^eYDR2 - Khoa Y, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

^eYDR2 - Faculty of Medicine Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam

(Ngày nhận bài: 26/4/2022, ngày phản biện xong: 26/5/2022, ngày chấp nhận đăng: 30/6/2022)

Tóm tắt

Bài báo giới thiệu công nghệ chế tạo và các tính chất nhiệt phát quang (TL) của liều kế $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ pha tạp Tm (LBO:Tm) dùng trong đo liều bức xạ ion hóa. Các kết quả nghiên cứu cho thấy: liều kế LBO:Tm có tính tương đương mô sinh học và có các tính chất đáp ứng tốt các yêu cầu của liều kế đo liều trong an toàn bức xạ cho lĩnh vực y học hạt nhân. Độ nhạy đối với liều tia X và tia γ đều cao hơn liều kế chuẩn TLD100, có độ ổn định tín hiệu theo thời gian lưu giữ và bền vững cả về cơ, lý, hóa, nhiệt. Với công nghệ chế tạo không phức tạp, lại có giá thành rẻ và có thể sản xuất với số lượng đáp ứng nhu cầu sử dụng trong nước, không phụ thuộc vào nhập ngoại, các liều kế được chế tạo từ vật liệu LBO:Tm rất có triển vọng ứng dụng đo liều khác nhau, đặc biệt trong đo liều xạ trị và đo liều cá nhân.

Từ khóa: Liều kế tương đương mô; đo liều xạ trị; đo liều cá nhân; đáp ứng liều.

Abstract

This paper introduces the fabrication technology and thermoluminescence (TL) properties of the Tm-doped $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ dosimeter (LBO:Tm) used in ionizing radiation dosimetry. The research results show that: the LBO:Tm dosimeter has bio-equivalent properties and meets the requirements of a radiation safety dosimeter for the field of nuclear medicine. Sensitivity to X-ray and γ -ray doses are both higher than that of the standard dosimeter TLD100, with signal stability over retention time and mechanical, physical, chemical, and thermal stability. With uncomplicated manufacturing technology, low cost and being able to be produced in quantities to meet domestic demand, regardless of imports, the dosimeters are made from LBO:Tm material very promising for various dosimetry applications, especially in radiotherapy dosimetry and personal dosimetry.

Keywords: Tissue-equivalent dosimeter; radiotherapy dosimetry; personal dosimetry; dose-response.

* *Corresponding Author:* Tran Ngoc; Institute of Research and Development, Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam; Faculty of Environment and Natural Science, Duy Tan University, Danang, 550000, Vietnam
Email: daotaorb@gmail.com hoặc tranngoc11@duytan.edu.vn

1. Giới thiệu

Phương pháp đo liều thụ động bằng liều kế nhiệt phát quang (TLD) là một trong các phương pháp đang được sử dụng rộng rãi để đo đạc, đánh giá các loại bức xạ ion hóa. Đây là một trong những phương pháp đo liều cơ bản trong lĩnh vực đo liều trong xạ trị, đo liều cá nhân và đo liều tích lũy trong an toàn bức xạ và bảo vệ môi trường [1, 2, 3]. Ở các nước, nhiều loại liều kế đã được thương mại hóa, sử dụng các vật liệu cảm biến nhiệt phát quang (TL) khác nhau như LiF, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, CaF_2 , CaSO_4 , Al_2O_3 ... Mỗi một loại vật liệu và liều kế tương ứng với nó có những tính chất riêng, phù hợp với các yêu cầu đo liều cụ thể. Vì vậy, mỗi quốc gia có sự lựa chọn vật liệu cảm biến để phát triển liều kế riêng cho quốc gia đó (ví dụ: Mỹ, Trung Quốc sử dụng và phát triển liều kế trên nền LiF; Pháp, Ấn Độ, Brazil lại sử dụng và phát triển vật liệu CaSO_4 và $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$; vật liệu Al_2O_3 :C rất nhạy với bức xạ tử ngoại lại được sử dụng độc quyền tại Mỹ ...). Để đo liều trong xạ trị hoặc liều kế cá nhân trong an toàn bức xạ, yêu cầu vật liệu làm liều kế phải có tính chất tương đương mô sinh học ($Z_{\text{eff}} = 7,4$), có dải tuyến tính theo liều chiếu rộng (từ vài μGy đến 10^3Gy), đáp ứng theo liều chiếu phụ thuộc rất ít vào năng lượng photon của bức xạ ion hóa và không có đáp ứng phi tuyến ở vùng liều thấp. Vì vậy, các vật liệu trên cơ sở hợp chất nền có chứa litium (như LiF và $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$) có $Z_{\text{eff}} = 7,3$ (gần tương đương mô) đã được sử dụng nhiều nhất [4, 5, 6, 7].

Ở nước ta, các nghiên cứu tập trung vào hướng tìm kiếm các vật liệu mới phù hợp với các mục đích đo liều cụ thể, hoặc cải tiến các vật liệu đã có bằng cách nâng cao độ nhạy, độ ổn định, tính bền vững cả về cơ, lý, hóa, nhiệt thông qua việc tối ưu hóa công nghệ chế tạo và tỷ lệ thành phần nền và tạp. Ngoài ra phương pháp chế tạo phải đơn giản, khả năng đáp ứng về số lượng (nhưng vẫn giữ được độ đồng nhất

tính chất TL của vật liệu) và giá thành có thể chấp nhận được. Cho đến nay một số phòng thí nghiệm trong nước đã thực hiện các nghiên cứu và chế tạo thành công một số vật liệu cảm biến trên nền chứa Li như LiF:Ti,P và $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$:Cu dùng trong đo liều xạ trị và đo liều cá nhân. Vì vậy, bên cạnh việc sử dụng sản phẩm LiF:Mg,Ti (TLD100) để đo liều xạ trị và CaSO_4 :Dy (TLD900) cho đo liều cá nhân được nhập ngoại từ Mỹ, thì thị trường trong nước đã bắt đầu hướng tới các sản phẩm do trong nước chế tạo được [2, 3, 4].

Trên cơ sở hướng nghiên cứu mở rộng các ứng dụng của loại vật liệu cảm biến dựa trên nền $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (LBO) dùng làm liều kế đo liều trong an toàn bức xạ cho lĩnh vực y học hạt nhân (bao gồm đo liều trong xạ trị và đo liều cá nhân), sự pha tạp các nguyên tố kim loại chuyển tiếp được thay thế bằng các nguyên tố thuộc họ lantan (đất hiếm-RE) [9]. Trong bài báo này chúng tôi giới thiệu công nghệ chế tạo, các kết quả nghiên cứu tính chất TL và đánh giá khả năng đáp ứng các tiêu chí của vật liệu $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ pha tạp Thulium (LBO:Tm) dùng làm liều kế đo liều cá nhân và đo liều xạ trị trong lĩnh vực y học hạt nhân.

2. Phương pháp thực nghiệm

2.1. Chế tạo liều kế dạng bột.

Vật liệu LBO:Tm dạng bột được chế tạo bằng phương pháp phản ứng pha rắn theo các bước cụ thể như sau:

(1) Các tiền chất ban đầu gồm Li_2O , H_3BO_3 và Tm_2O_3 là các hóa chất sạch dùng trong phân tích (của hãng Aldrich) được trộn theo tỉ lệ 30% mol Li_2O , 69,5% mol H_3BO_3 và 0,5% mol Tm_2O_3 bằng cách nghiền trộn trong cối mã não trong 30 phút.

(2) Sản phẩm sau đó được thiêu kết ở nhiệt độ 720°C trong 1 giờ (dùng chén sứ không men) trong lò nung, sau đó được làm nguội chậm xuống nhiệt độ phòng bằng cách ngắt nguồn điện.

(3) Sản phẩm sau khi nung, được ủ ở 400°C trong 1 giờ, nhằm ổn định cấu trúc của vật liệu.

(4) Cuối cùng, sản phẩm được nghiền và sàng tuyển các hạt có kích thước từ 75 đến $150\mu\text{m}$ dùng làm liều kế cá nhân.

Việc sử dụng vật liệu đo liều (đặc biệt là trong đo liều xạ trị và liều cá nhân) ở dạng bột thường có độ nhạy cao nhưng lại gặp nhiều khó khăn trong khâu triển khai ứng dụng và đặc biệt là tính ổn định của liều kế. Vì vậy, chúng tôi đã tìm hiểu công nghệ và ban đầu đã ép thành công viên nén bằng công nghệ ép cơ học (không dùng phụ gia) trước khi thiêu kết.

2.2. Chế tạo liều kế dạng thủy tinh.

Vật liệu LBO:Tm dạng thủy tinh được chế tạo bằng phương pháp nung nóng chảy trong môi trường khử sử dụng than graphit, theo các bước cụ thể như sau:

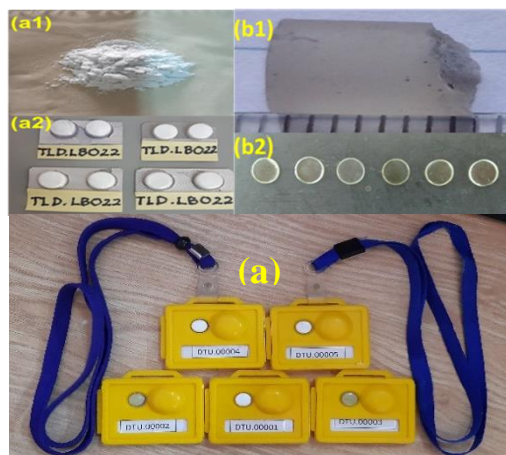
(1) Các tiền chất ban đầu gồm Li_2O , H_3BO_3 và Tm_2O_3 là các hóa chất sạch dùng trong phân tích (hãng Aldrich) được trộn theo tỉ lệ 30%mol Li_2O , 69,5%mol H_3BO_3 và 0,5%mol Tm_2O_3 bằng cách nghiền trộn trong cối mã não trong 30 phút.

(2) Sản phẩm sau đó được được nén nhẹ vào khuôn than (graphit) rồi cho vào lò nung. Tăng nhiệt độ lên đến 300°C (đây là nhiệt độ chuyển pha cấu trúc lần 1), giữ trong 1 giờ để mẫu hoàn thành chuyển pha cấu trúc lần 1. Tiếp tục tăng nhiệt độ đến 970°C và giữ thật ổn định nhiệt độ này trong 1 giờ (ở nhiệt độ này mẫu đã hoàn toàn ở thể lỏng). Sau đó ngắt nguồn điện của lò nung, mở cửa lò đưa dần mẫu ra khỏi lò, đợi nguội đến nhiệt độ phòng.

(3) Lấy mẫu ra khỏi khuôn than, cho mẫu vào chén sứ không men và đưa mẫu trở lại lò nung, ủ mẫu ở 400°C trong 2 giờ (để ổn định cấu trúc của thủy tinh), sau đó hạ chậm nhiệt độ về nhiệt độ phòng.

(4) Khối mẫu được rửa sạch bằng nước cất nhiều lần, sau đó cắt, mài phẳng và đánh bóng hai mặt để được các mẫu có kích thước đồng

đều (đường kính $d = 5\text{mm}$, độ dày $h = 1\text{mm}$). Lô mẫu sau đó được đưa vào tủ sấy ở 50°C trong 24h. Hình 1 là sản phẩm mẫu LBO:Tm cả hai dạng bột (a1, a2) và thủy tinh (b1, b2).



Hình 1: (a1) mẫu dạng bột sau khi đã thành phẩm, (a2) mẫu liều kế (bột) đã được chuẩn 10 mg, (b1) mẫu dạng thủy tinh khi mới lấy ra khỏi khuôn, (b2) sau khi cắt, mài đánh bóng hai mặt và (a) mẫu liều kế cá nhân sau khi đã thành phẩm.

2.3. Các phép đo nghiên cứu tính chất TL của vật liệu LBO:Tm.

Các phép đo đường cong TL tích phân (glow curve) và đọc liều được thực hiện trên máy đo thương mại HARSHAW-D 3500 (có sử dụng khay đo). Các phép đo được thực hiện trong dải nhiệt độ từ 30°C đến 430°C có chế độ preheat ở 30°C .

Liều γ được thực hiện từ nguồn Co^{60} (được hiệu chuẩn đến μGy)

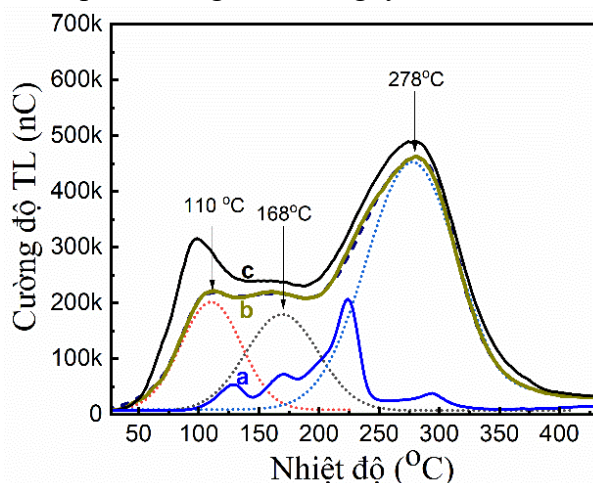
Liều tia X được thực hiện thông qua máy phát tia X (YPC1 X-ray generator, X-tube with Cu target với chế độ hoạt động $V_{\text{max}} = 50\text{kV}$, $I_{\text{max}} = 20\text{mA}$ và có tốc độ liều 1,1Gy/phút).

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Tính chất nhiệt phát quang của LBO:Tm

Cấu trúc đường cong nhiệt phát quang (TL glow curve) của vật liệu phụ thuộc rất mạnh vào loại tạp chất và nồng độ của nó có mặt trong vật liệu. Ngoài ra cấu trúc này còn phụ thuộc vào hợp chất nền và phương pháp chế tạo, nói cách khác là phụ thuộc vào tỷ lệ thành phần các phối liệu ban đầu và phương pháp chế

tạo vật liệu [1]. Hình 2 là đường cong nhiệt phát quang của LiF:Mn,Ti (a) (liều kế thương mại TLD100); LBO:Tm dạng thủy tinh (b) và LBO:Tm dạng bột (c) (chiếu xạ tia X với suất liều $D = 5,5\text{Gy}$, tốc độ gia nhiệt $\beta = 5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$, preheat ở 30°C). Chúng ta thấy cấu trúc của các đường cong (b) và (c) không khác nhau nhiều, phân tích đường cong bằng cách làm khớp tối ưu theo phân bố Gaussian (các đường cong chấm chấm ở Hình 2), ta được các dải rộng phát xạ không chồng chập có các cực đại ở 110°C , 168°C và 278°C . Dải được chọn dùng trong đo liều có cực đại ở 278°C , bởi lẽ dải này có cực đại nằm trong vùng nhiệt độ mong muốn của một vật liệu sử dụng trong phép đo liều bằng TL (từ 200°C đến 300°C) [9, 10, 11, 12]. Mặt khác dải ở nhiệt độ này có độ ổn định tín hiệu tốt (ít bị fading do tác động của nhiệt độ, ánh sáng và thời gian), nhạy với liều chiếu (có cường độ lớn nhất) và cấu trúc dải dễ phân tích. Cho dù tạp chất ở đây là Tm (một nguyên tố nằm trong nhóm đất hiếm - RE), nhưng các dải phát xạ đều là dải rộng mà không phải là các dải hẹp đặc trưng của các nguyên tố RE.



Hình 2: Đường cong TL tích phân của LiF:Mn,Ti (a); LBO:Tm dạng thủy tinh (b) và LBO:Tm dạng bột (c) (chiếu xạ tia X-5,5Gy, tốc độ gia nhiệt $\beta = 5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$, preheat ở 30°C)

Điều đó có thể được lý giải như sau: vì các mẫu chế tạo nằm trong nhóm các vật liệu vô định hình, khi có mặt của các tạp chất (đóng vai trò là các khuyết tật mạng) sẽ làm thay đổi tính

chất của trường tinh thể xung quanh chúng một cách ngẫu nhiên, đặc biệt là góc và chiều dài liên kết với các ion gần nhất. Kết quả là cấu trúc các mức năng lượng kích hoạt của các bẫy có xu hướng mở rộng, dẫn đến các dải phát xạ TL thường có dải rộng đặc trưng động học bậc 2 và theo phân bố Gaussian [9, 10, 11, 12].

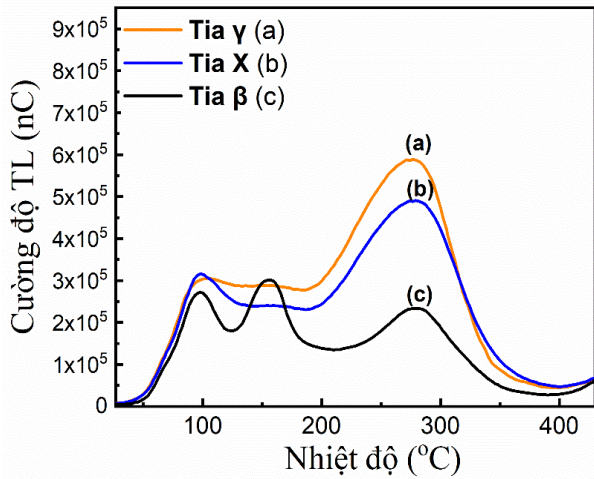
Áp dụng phương pháp độ bán rộng của R.Chen [5], cùng với việc xem quy luật phát xạ TL là gần đúng theo động học bậc 2, để xác định các thông số động học như: năng lượng kích hoạt E (eV) (độ sâu bẫy), hệ số tần số s (Hz) (tần số thoát) và thời gian sống của các điện tử trên bẫy τ (s) của các bẫy tương ứng với các cực đại trên đường cong TL tích phân của vật liệu LBO: Tm. Các kết quả thu được, được trình bày trong Bảng 1.

Bảng 1. Kết quả xác định các thông số động học: năng lượng kích hoạt E_T (eV), hệ số tần số s (Hz) và thời gian sống τ (s) của các bẫy tương ứng với đường cong TL tích phân cho mẫu $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: Tm dạng bột.

Cực đại đỉnh T_{\max} ($^\circ\text{C}$)	Thông số động học của bẫy		
	E (eV)	s (Hz)	τ (giờ, năm)
100	0,87	$8,2 \cdot 10^{12}$	36,6 giờ
167	1,06	$2,4 \cdot 10^{12}$	7,1 năm
278	1,24	$1,7 \cdot 10^{10}$	$2,6 \cdot 10^2$ năm

3.2. Khả năng đáp ứng TL vào năng lượng photon bức xạ ion hóa của vật liệu LBO:Tm

Đáp ứng TL của vật liệu LBO:Tm (dạng thủy tinh) vào năng lượng photon của bức xạ ion hoá: tia X, tia γ và tia β được trình bày ở Hình 3. Nếu so sánh các đường cong a, b, c trong Hình 3 ta thấy: cho dù dạng của các đường cong có khác nhau, nhưng số cực đại và vị trí nhiệt độ cực đại đều giống nhau, điều đó cho thấy bức xạ ion hóa không làm ảnh hưởng nhiều đến cấu trúc các tâm bẫy điện tử trong vật liệu. Tuy nhiên, cường độ các cực đại và tỷ lệ cường độ giữa các cực đại trên mỗi đường cong đều khác nhau, điều này cho thấy xác suất bắt và giải phóng điện tử của các bẫy khác nhau là khác nhau đối với các bức xạ ion hóa khác nhau.



Hình 3: Đáp ứng TL của vật liệu LBO:Tm (dạng thủy tinh) vào năng lượng photon của bức xạ ion hóa, (a) tia γ , (b) tia X và (c) tia β (liều chiếu 5,1Gy, tốc độ gia nhiệt $\beta=5^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$)

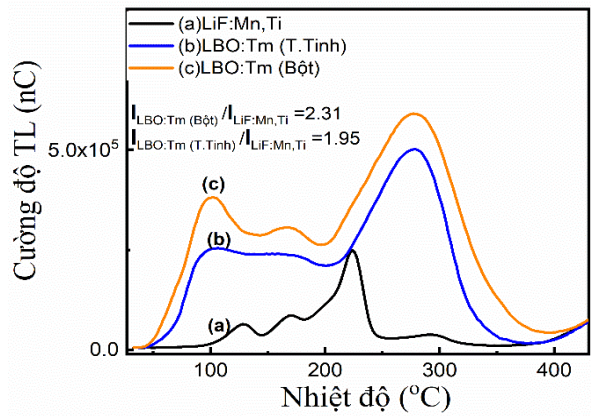
Hai đường cong a và b có dạng gần giống nhau cả về đáp ứng cường độ đỉnh, tuy nhiên cường độ các dải cho thấy vật liệu nhạy với bức xạ γ hơn bức xạ tia X. Ở đường cong c có sự khác biệt rõ nét với hai đường cong a và b, cường độ TL của đỉnh đo liều (xét đỉnh dùng đo liều ở 278°C) đối với bức xạ β nhỏ hơn 2,1 lần so với bức xạ tia X và 2,5 lần so với bức xạ γ , điều đó cho thấy vật liệu kém nhạy khi bị chiếu xạ β . Kết quả này cho thấy khả năng dùng vật liệu LBO:Tm trong đo liều bức xạ γ và tia X tốt hơn dùng cho tia β và điều đó rất phù hợp cho đo liều trong xạ trị (chủ yếu là đo liều γ) và đo liều cá nhân (chủ yếu là đo liều tia X và γ).

3.3. Khả năng đáp ứng TL (độ nhạy) theo liều chiếu xạ của vật liệu LBO:Tm

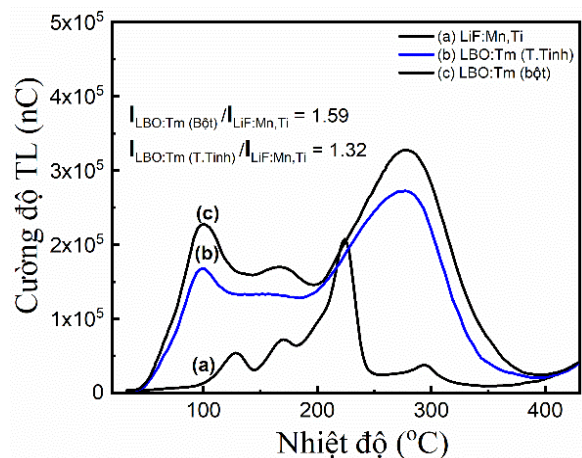
Với mục tiêu ban đầu sử dụng vật liệu LBO:Tm để đo liều xạ trị và đo liều cá nhân, vì vậy chúng tôi chỉ khảo sát khả năng đáp ứng liều của vật liệu LBO:Tm theo liều chiếu xạ tia X và tia γ . Các loại liều kế đều được chiếu xạ với suất liều 5,1 Gy (đối với tia X) và 2 Gy (đối với tia γ), các phép đo được thực hiện với cùng một tốc độ gia nhiệt ($\beta = 5^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$), preheat ở 30°C , thời gian giữa chiếu xạ và đo đặc $t = 5$ phút, các điều kiện khác đều giống nhau. Độ nhạy TL của vật liệu chế tạo LBO:Tm (dạng thủy tinh) và LBO:Tm (dạng bột) được so sánh

với liều kế thương mại TLD100 theo liều tia X (Hình 4) và theo liều tia γ (Hình 5).

Nếu so sánh cường độ của đỉnh dùng đo liều ($T_m = 225^{\circ}\text{C}$ (của TLD100) và $T_m = 278^{\circ}\text{C}$ (của LBO:Tm)), thì tỷ số cường độ TL thu được là: $I_{\text{LBO:Tm (Bột)}} / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 2,31$ và $I_{\text{LBO:Tm (T.Tinh)}} / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 1,95$ (với liều chiếu xạ tia X) và $I_{\text{LBO:Tm (Bột)}} / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 1,59$ và $I_{\text{LBO:Tm (T.Tinh)}} / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 1,32$ (với liều chiếu xạ tia γ). Ta thấy với liều kế TLD100, đáp ứng liều γ tốt hơn so với tia X và tỷ lệ này lớn hơn nhiều so với LBO:Tm, vì vậy tỷ số cường độ của đỉnh đo liều giữa hai loại liều kế này đều thấp hơn với trường hợp liều chiếu tia X.



Hình 4: Độ nhạy TL theo liều tia X: (a) liều kế thương mại TLD100, (b) LBO:Tm (dạng thủy tinh) và (c) LBO:Tm (dạng bột) (chiếu xạ tia X - 5,1Gy, tốc độ gia nhiệt $5^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$, preheat ở 30°C , thời gian giữa chiếu xạ và đo đặc $t = 5$ phút).



Hình 5: Độ nhạy TL theo liều tia γ : (a) liều kế thương mại TLD100, (b) LBO:Tm (dạng thủy tinh) và (c) LBO:Tm (dạng bột) (chiếu xạ tia γ - 2 Gy, tốc độ gia nhiệt $5^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$, preheat ở 30°C , thời gian giữa chiếu xạ và đo đặc $t = 5$ phút).

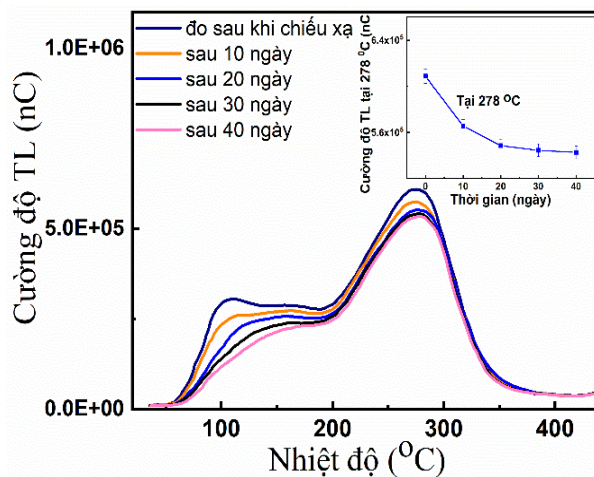
Kết quả này cũng cho thấy, đối với bức xạ tia X và tia γ , liều kế được chế tạo từ vật liệu LBO:Tm đều nhạy hơn liều kế thương mại TLD100, vậy nên nếu chúng ta cải tiến công nghệ chế tạo sao cho các thông số khác ổn định hơn (độ fading tín hiệu, độ đồng nhất, dải đáp ứng tuyến tính theo liều chiếu rộng, độ đồng nhất trong một lô mẫu chế tạo), thì việc triển khai ứng dụng để đo liều trong an toàn bức xạ của loại liều kế này hoàn toàn khả thi. Tuy rằng liều kế LBO:Tm dạng bột có độ nhạy cao hơn so với liều kế dạng thủy tinh, nhưng liều kế dạng bột thường có độ ổn định tín hiệu TL kém hơn và phụ thuộc nhiều vào điều kiện bên ngoài và thao tác trong đo đạc, vì vậy liều kế LBO:Tm dạng bột thích hợp trong đo liều cá nhân, còn liều kế dạng thủy tinh lại thích hợp để đo liều xạ trị [2, 3, 6, 7].

3.4. Khả năng đáp ứng độ ổn định tín hiệu theo thời gian lưu giữ mẫu sau khi chiếu xạ.

Độ ổn định tín hiệu theo thời gian lưu giữ liều kế là một thông số không thể thiếu và mang tính quyết định đến độ chính xác của phép đọc liều (đặc biệt các liều kế dùng trong đo liều cá nhân và đo liều xạ trị). Vì vậy, tiêu chuẩn để có một liều kế tốt phải có độ suy hao của tín hiệu TL theo thời gian cất giữ mẫu sau khi đã chiếu xạ (còn gọi là hiệu ứng fading) phải nhỏ (thường nhỏ hơn 7%/tháng) và có quy luật rõ rệt [2, 3]. Để đánh giá độ suy hao tín hiệu TL theo thời gian, lô mẫu sau khi chế tạo và chiếu xạ được để vào hộp kín sáng (ở nhiệt độ phòng, có hút ẩm), nhằm hạn chế các yếu tố ngoại cảnh chi phối khi mẫu được cất giữ trong thời gian dài, như ảnh hưởng độ ẩm của môi trường, sự thăng giáng nhiệt độ giữa ngày và đêm, giữa các mùa... [2, 3].

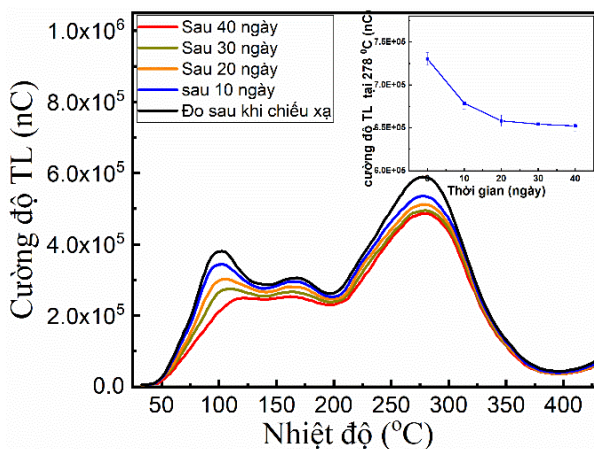
Hình 6 và Hình 7 là kết quả khảo sát độ ổn định tín hiệu TL theo thời gian cất giữ mẫu LBO:Tm sau khi được chiếu xạ (Hình 6 của mẫu thủy tinh và Hình 7 của mẫu bột). Hình đưa vào trong các Hình 6 và 7 là quy luật suy

giảm tín hiệu (cường độ của đỉnh dùng đo liều có cực đại ở 278⁰C) sau 40 ngày khảo sát.



Hình 6: Độ suy giảm tín hiệu TL của LBO:Tm (thủy tinh) theo thời gian lưu giữ mẫu ở nhiệt độ phòng.

Ta thấy rằng, tốc độ suy hao tín hiệu khi mẫu được giữ ở nhiệt độ phòng của cả hai dạng liều kế sau 10 ngày đầu là khá lớn (khoảng 7,1% đối với mẫu bột và 6,8% đối với mẫu thủy tinh), còn sau đó ổn định hơn (chỉ khoảng 3,1% đối với mẫu bột và 2,9% đối với mẫu thủy tinh) và khá tuyến tính theo thời gian. Trong giới hạn khảo sát 40 ngày chưa quan sát được sự bão hòa tín hiệu.



Hình 7: Độ suy giảm tín hiệu TL của LBO:Tm (bột) theo thời gian lưu giữ mẫu ở nhiệt độ phòng

Quy luật suy giảm tín hiệu TL theo thời gian sẽ là một thông số để hiệu chỉnh kết quả đọc liều. Do thời gian khảo sát còn ngắn, các điều kiện lưu giữ mẫu chưa đạt được tối ưu nhất, nên

có thể kết quả này chưa đủ tốt để lập dự báo về sự suy giảm tín hiệu theo thời gian một cách tuyệt đối, tuy nhiên các kết quả này có thể chấp nhận được để sử dụng trong việc hiệu chỉnh kết quả đọc liều khi các lô mẫu được sử dụng.

4. Kết luận

Kết quả nghiên cứu chế tạo và tính chất TL của liều kế trên cơ sở nền $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ pha tạp Tm đã chỉ ra rằng: LBO:Tm (ở cả dạng thủy tinh và bột) là vật liệu tương đương mô, công nghệ chế tạo không quá phức tạp, phù hợp với các điều kiện của các phòng thí nghiệm trong nước. Tốc độ suy giảm tín hiệu khi lưu giữ mẫu (ở nhiệt độ phòng) xảy ra khá lớn ở 10 ngày đầu (khoảng 7,1% đối với mẫu bột và 6,8% đối với mẫu thủy tinh), sau 40 ngày (khoảng 3,1% đối với mẫu bột và 2,9% đối với mẫu thủy tinh) và khá tuyến tính theo thời gian. Đối với bức xạ tia X và tia γ , liều kế được chế tạo từ vật liệu LBO:Tm đều nhạy hơn liều kế thương mại TLD100 ($I_{\text{LBO:Tm}}(\text{Bột}) / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 2,31$ và $I_{\text{LBO:Tm}}(\text{T.Tinh}) / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 1,95$ (trường hợp liều chiếu xạ tia X) và $I_{\text{LBO:Tm}}(\text{Bột}) / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 1,59$ và $I_{\text{LBO:Tm}}(\text{T.Tinh}) / I_{\text{LiF:Mn,Ti}} = 1,32$). Cùng với độ ổn định nhiệt, cơ, hóa và quang học cao, đây là các thông số phù hợp với tiêu chí của liều kế đo liều cá nhân và đo liều xạ trị. Ngoài ra, các kết quả đánh giá các thông số làm nên chất lượng liều kế được tiến hành song song trên cả hai loại liều kế TLD100 (thương mại) và LBO:Tm (tự chế tạo) đã cho thấy chúng có chất lượng gần tương đương nhau, nhưng giá thành của LBO:Tm rẻ hơn rất nhiều (mỗi liều kế không quá 1,5 USD) và có thể sản xuất với số lượng đáp ứng nhu cầu sử dụng trong nước, không phụ thuộc vào nhập ngoại. Kết quả này cho thấy các liều kế được chế tạo từ vật liệu LBO:Tm rất có triển vọng ứng dụng đo liều khác nhau, đặc biệt là trong đo liều xạ trị và đo liều cá nhân.

Lời cảm ơn: Nhóm tác giả trân trọng cảm ơn chương trình Sinh viên nghiên cứu khoa học của Khoa Y Dược - Trường Đại học Duy Tân

đã tạo điều kiện thuận lợi cho nhóm hoàn thành đề tài này.

Tài liệu tham khảo

- [1] Horowitz.Y.S. (1984), *Thermoluminescence and Thermoluminescence dosimetry*, CRC Press. Inc. Boca Raton Florida, Vol. I, II, III.
- [2] T.Ngọc, T.T.H.Giang, C.N.A.Minh. (2020), *Chế tạo và đánh giá khả năng sử dụng liều kế $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ trong đo liều tích lũy môi trường lòng đất*, Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân, 04(41), 3-20.
- [3] T.Ngọc. (2021), *Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt phát quang của thủy tinh aluminoborate-kiểm pha tạp samarium (ABLi:Sm) định hướng ứng dụng trong đo liều bức xạ tia X*, Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân, 01(44), 30-35.
- [4] L.T.Oanh, Đ.T.Luong, D.T.Tài. (2018), *Phương pháp tính liều tuyệt đối trong mô phỏng Monte Carlo*, Science & technology development journal: natural sciences, vol 2, issue 5, pp 90-96.
- [5] Chen.R and McKeever.S.W.S. (1998), *Theory of thermoluminescence and Related phenomena*, World Scientific.
- [6] P.V.Duyệt. (1986), *An toàn vệ sinh phóng xạ*. Nxb Y học, Hà Nội.
- [7] Jan van Dam and Ginette Marinello. (1999), *Methods for in vivo dosimetry in External Radiotherapy*, Physics for clinucak radiotherapy, Booklet No.1.
- [8] Kimberly. M, Creach.M.D, Robert. L, Foote.M.D, Michelle.A, Neben-Wittich.M.D and Robert.A, Kyle.M.D. (2009), *Radiotherapy for extramedullary plasmacytoma of the head and neck*, Int. J. Radiation Oncology Biol. Phys., Vol. 73, No. 3, pp. 789–794, <https://doi.org/10.1016/j.ijrobp.2008.04.077>.
- [9] H.W. Kui, D. Lo, Y.C. Tsang, N.M. Khaidukov, V.N. Makhov. (2006), *Thermoluminescence properties of double potassium yttrium fluorides singly doped with Ce^{3+} , Tb^{3+} , Dy^{3+} and Tm^{3+} in response to α and β irradiation*, Journal of Luminescence, 117, pp 29-38.
- [10] A.R.Lakshmanan, D.Lapraz, H.Prévost, and M.Benabdesselam. (2005), *Thermostimulated luminescence properties of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ and $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ phosphors annealed at high temperatures*, Phys. stat. sol. (a) 202, No. 1, 131–139, <https://doi.org/10.1002/pssa.200406911>.
- [11] Y.Wang, N.Can, P.D.Townsend. (2011), *Influence of Li dopants on thermoluminescence spectra of CaSO_4 doped with Dy or Tm*, Journal of Luminescence, 131, 1864–1868, <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2011.04.042>
- [12] D.Kartikasari, A.Zulys, E.Hiswara, and N.Nuraeni. (2018), *Synthesis of Thermoluminescence Dosimeter (TLD) Using Calcium Sulfate (CaSO_4) with Variations of Dysprosium (Dy) and Thulium (Tm) Dopants*, AIP Conference Proceedings, 020084; <https://doi.org/10.1063/1.5064081>.