TẠP CHÍ KHOA HỌC & CÔNG NGHỆ ĐẠI HỌC DUY TÂN
DTU Journal of Science and Technology 01(56) (2023) 61-68

TRƯỜNG ĐẠI HỌC DUY TÂN
DUYTAN UNIVERSITY

Nghiên cứu chế tạo và tính chất nhiệt phát quang của vật liệu Al_2O_3 pha tạp SiO_2, định hướng ứng dụng trong đo liều cá nhân và bức xạ tử ngoại

Research on fabrication and thermoluminescence properties of SiO_2-doped Al_2O_3 materials for application in personal dosimetry and ultraviolet radiation

Trần Ngọc[a,b*], Phan Văn Độ[c]
Tran Ngoc[a,b*], Phan Van Do[c]

[a.] *Viện Nghiên cứu và Phát triển công nghệ Cao, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam*
Institute of Research and Development, Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam
[b.] *Khoa Môi trường và Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam*
Faculty of Environmental and Natural Sciences, Duy Tan Unversity, Da Nang, 550000, Vietnam
[c] *Trường Đại học Thủy lợi, 175 Tây Sơn, Đống Đa, Hà Nội, Việt Nam*
[c] *Thuy loi University, 175 Tay Son, Dong Da, Hanoi, Vietnam*
Email: daotaoqb@gmail.com hoặc tranngoc11@duytan.edu.vn

(Ngày nhận bài: 12/10/2022, ngày phản biện xong: 15/01/2023, ngày chấp nhận đăng: 20/01/2023)

Tóm tắt

Liều kế trên cơ sở vật liệu Al_2O_3 đã được chế tạo thành công bằng phương pháp nung thiêu kết ở nhiệt độ 1100^0C. Các thông số tối ưu như: tốc độ làm nguội mẫu, nhiệt độ nung mẫu, thời gian nung… trong qui trình chế tạo đã được xác định. Vật liệu có độ ổn định nhiệt, cơ, hoá và quang học cao và rất nhạy với các loại bức xạ ion hóa (đặc biệt là bức xạ tử ngoại - UV). Đáp ứng nhiệt phát quang (TL) tuyến tính tốt trong dải liều nhỏ cỡ µGy (đối với bức xạ UV, đáp ứng TL tuyến tính trong khoảng thời gian chiếu từ 5 ÷ 900 giây), có tốc độ suy giảm tín hiệu khá thấp (vào khoảng 6% trong 24 giờ đầu, sau đó tín hiệu giảm không đáng kể cỡ 0,5%). Đây là các thông số phù hợp với tiêu chí sử dụng liều kế Al_2O_3 trong việc đo liều cá nhân hoặc liều UV.

Từ khóa: Nhiệt phát quang; đo liều tử ngoại; đo liều cá nhân; độ lệch chuẩn.

Abstract

The dosimeter based on Al_2O_3 material has been successfully fabricated by sintering at 1100^0C. Optimal parameters such as sample cooling rate, sample heating temperature, heating time, etc. in the fabrication process have been determined. The material has high thermal, mechanical, chemical and optical stability and is very sensitive to various types of ionizing radiation (especially ultraviolet radiation (UV)). The thermoluminescence response (TL) is linear in a small dose range of µGy (for UV radiation, the TL response is linear in the exposure time from 5 to 900 s), and has a relatively low signal attenuation rate (about 6% in the first 24 hours, after that the signal drops slightly by 0.5%). These are parameters that match the criteria for using Al_2O_3 dosimeters in personal dosimetry and UV dosimetry.

Keywords: Thermoluminescence; ultraviolet dosimetry; personal dosimetry; standard deviation.

[*] *Tác giả liên hệ:* Trần Ngọc, Viện Nghiên cứu và Phát triển Công nghệ Cao, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam; Khoa Môi trường và Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam.
*Email:*daotaoqb@gmail.com

1. Giới thiệu

Vật liệu nhiệt phát quang (TL) là yếu tố cơ bản và không thể thiếu trong hệ thống đo liều bức xạ ion hóa bằng TL (TLD). Có rất nhiều hợp chất tự nhiên hoặc vật liệu tổng hợp có tính chất TL, tuy nhiên không phải tất cả chúng đều thích hợp với đo liều bức xạ. 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 cho một loại bức xạ tương ứng. Tuy nhiên tiêu chuẩn chung mà một liều kế cần phải đáp ứng là: đường cong TL tích phân phải tương đối đơn giản; nhiệt độ đỉnh dùng đo liều phải nằm trong khoảng 180^{o}C đến 300^{o}C; độ nhạy liều phải cao (hiệu suất bức xạ cao và ngưỡng liều thấp); độ fading tín hiệu theo thời gian, nhiệt độ phải thấp; bức xạ TL ít phụ thuộc vào năng lượng photon ion hóa; tín hiệu TL tuyến tính trong khoảng liều bức xạ quan tâm (theo mục đích đo liều); số nguyên tử hiệu dụng Z_{eff} tương đương hoặc gần tương đương mô ($Z_{eff} \approx 7,4$) đối với các liều kế sử dụng liên quan đến sinh vật sống [1, 2, 3, 4]. Nhìn chung, các hợp chất tinh khiết như các muối và các ôxit đều có tính chất TL. Nhưng chúng đều có độ nhạy liều thấp, vì thế ít được quan tâm sử dụng trong đo liều. Để nâng cao hiệu suất TL cho các vật liệu này, ta có thể pha tạp có chủ định với một tỷ lệ xác định một hoặc một vài nguyên tố khác. Khi đó các ion tạp này sẽ đóng vai trò là các thành phần kích hoạt tính chất quang cho vật liệu nền. Thành phần tạp thông thường được lựa chọn dựa trên tiêu chí về hiệu suất TL cao nhất (thường sử dụng các nguyên tố đất hiếm hoặc kim loại chuyển tiếp), nhưng các thông số khác không kém phần quan trọng cũng được quan tâm như giá thành thấp, sẵn có trên thị trường [1, 5, 6, 7]. Vật liệu α-Al_2O_3 nằm trong nhóm các vật liệu TLD đầu tiên được nghiên cứu tổng hợp và ứng dụng. Tuy nhiên, vào thời điểm đó loại vật liệu này có độ nhạy bức xạ gamma thấp (cở 0,12 lần so với vật liệu chuẩn LiF:Mg,Ti) nên cần được nghiên cứu cải tiến quy trình chế tạo và chất pha tạp [7, 8, 9]. Sau đó, bằng việc pha tạp Cr^{3+} vào vật liệu nền α-Al_2O_3 đã làm tăng độ nhạy TL của vật liệu lên 40 lần so với khi không pha tạp, nhưng do nhiệt độ đỉnh đo liều T_{max} = 307^{o}C và phổ bức xạ TL là λ_{max} = 699nm nên không thuận lợi đối với phép đo TL. Các vật liệu α-Al_2O_3 với các tạp chất như Mg, Ti, Y hoặc Si đều có độ nhạy liều cao đã được chế tạo thành công ở một số quốc gia như Nga, Ấn Độ, Brazin… Đặc biệt, việc chế tạo thành công các đơn tinh thể α-Al_2O_3:C có độ nhạy liều cao hơn vật liệu LiF cỡ 40-60 lần và được ứng dụng rộng rãi trong đo liều, đã cho thấy các triển vọng ứng dụng mở rộng của loại vật liệu này [7, 8, 9, 10].

Trong bài báo này chúng tôi trình bày công nghệ chế tạo liều kế α-Al_2O_3 pha tạp Si bằng phương pháp nung thiêu kết ở nhiệt độ cao. Các kết quả nghiên cứu về tính chất TL như: dạng đường cong tích phân, vị trí cực đại phổ xuất hiện trong vùng nhiệt độ nào, độ đáp ứng liều đối với bức xạ ion hóa, dải liều đáp ứng liều tuyến tính hoặc thời gian chiếu UV, tốc độ suy giảm tín hiệu theo thời gian lưu giữ mẫu… Qua đó để định hướng sử dụng liều kế α-Al_2O_3:Si trong đo liều cá nhân hoặc liều UV.

2. Phương pháp thực nghiệm

2.1. Chế tạo liều kế dạng bột

Vật liệu α-Al_2O_3:Si dạng bột được chế tạo bằng phương pháp nung thiêu kết ở nhiệt độ cao, theo các bước cụ thể như sau:

(1) Các tiền chất ban đầu gồm Al_2O_3 và SiO_2 là các hóa chất sạch dùng trong phân tích (của hãng Aldrich) được trộn đều theo tỉ lệ 99,5%mol Al_2O_3 và 0,5%mol SiO_2 (bằng cách nghiền trộn bằng cối mã não trong 30 phút).

(2) Sản phẩm sau đó được nung thiêu kết ở nhiệt độ 1100^{0}C trong 2 giờ (dùng khuôn graphit (than)) trong lò nung với tốc độ nâng nhiệt 5^{0}Cs^{-1}, sau đó được làm nguội nhanh xuống nhiệt độ phòng bằng cách ngắt nguồn

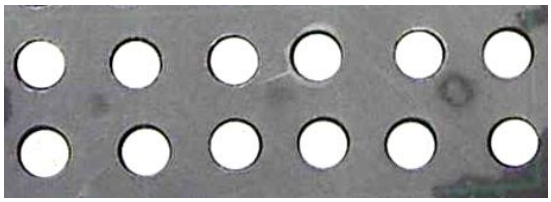
điện, lấy khuôn ra khỏi lò và cho tiếp xúc với nước lạnh (tốc độ hạ nhiệt 30^0Cs^{-1}).

(3) Sản phẩm sau khi nung, được ủ ở 500^{o}C trong 3 giờ, nhằm ổn định cấu trúc vật liệu.

(4) Cuối cùng, sản phẩm được nghiền, sàng tuyển các hạt có kích thước từ 75 đến 150µm dùng làm liều kế (bao gồm cả việc ép viên).

2.2. Công nghệ ép viên

Việc sử dụng vật liệu đo liều 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.



Hình 1. Sản phẩm viên nén α-Al_2O_3:Si sau khi ép nguội (dùng chất kết dính vô cơ)

Vì vậy, chúng tôi đã sử dụng công nghệ ép viên và đã ép thành công viên nén bằng công nghệ ép cơ học (dùng chất kết dính vô cơ) trước khi mẫu được ủ ở 500^{o}C. 15mg bột α-Al_2O_3:Si (có cỡ hạt trung bình từ 75 - 150µm) được trộn đều với chất kết dính vô cơ và cho vào cối ép viên sử dụng máy ép thủy lực bằng một áp lực 200kg/cm^2. Sản phẩm cuối cùng là các mẫu viên có đường kính 5mm, độ dày 1mm, khối lượng ~ 15mg như ở Hình 1.

2.3. Các phép đo kiểm tra chất lượng mẫu và nghiên cứu tính chất TL của vật liệu

Các phép đo nhiễu xạ tia X được thực hiện trên các máy Siemens D5005.

Các phép đo đường cong TL tích phân và đọc liều được thực hiện trên máy đo thương mại HARSHAW-D3500 (có sử dụng khay đo). Các phép đo được thực hiện trong dải nhiệt độ từ 30^0C đến 430^0C, chế độ preheat ở 30^0C.

Liều tia X được thực hiện từ nguồn YPC1-X-ray generator, X-tube with Cu target.

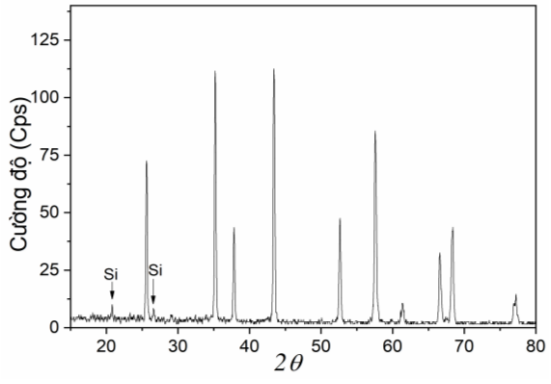
Liều γ được thực hiện từ nguồn Co^{60} (được hiệu chuẩn đến µGy) dùng trong xạ trị.

Liều tử ngoại (UV) được thực hiện bằng nguồn đèn D_2 (CTS Shimadzu Deuterium Lamp SPD-10A - 228-34016-02) được chuẩn liều bằng nguồn chuẩn.

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Đánh giá độ ổn định của công nghệ chế tạo liều kế-Phổ nhiễu xạ tia X

Bằng cách khảo sát các chế độ trong quá trình chế tạo mẫu: nồng độ tạp tối ưu, tốc độ nhiệt nung mẫu, thời gian nung mẫu, tốc độ nhiệt làm nguội, chế độ xử lý nhiệt, nhiệt độ ủ mẫu... chúng tôi đã chọn ra được các thông số tối ưu trong quy trình công nghệ chế tạo mẫu: Nồng độ tạp tối ưu 0,5%mol SiO_2, tốc độ nâng nhiệt 5^0Cs^{-1}, thời gian nung 2giờ, tốc độ làm nguội 30^0Cs^{-1}, nhiệt độ ủ mẫu 500^{o}C, thời gian ủ 5h. Hình 2 là phổ nhiễu xạ tia X của mẫu bột α-Al_2O_3:Si với thành phần: 99,5Al_2O_3 + 0,5SiO_2 thu được sau khi đã tối ưu hóa công nghệ chế tạo. Hình ảnh phổ cho thấy mẫu chế tạo đơn pha α-Al_2O_3, có cấu trúc lục giác với các thông số mạng: a = b = 0,4758 nm, α = β = 90^0 và γ = 120^0.



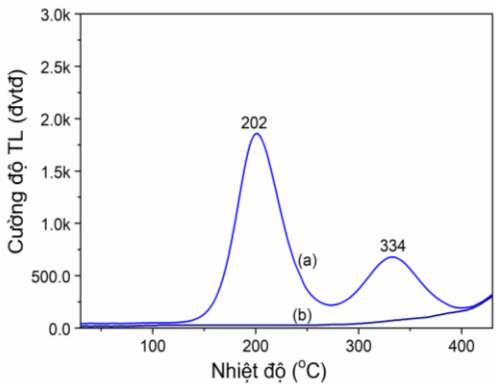
Hình 2. Phổ nhiễu xạ tia X (XRD) của mẫu α-Al_2O_3:Si

Tính đồng nhất của lô mẫu là vấn đề rất quan trọng trong kỹ thuật đo liều, trong lô mẫu chế tạo thường thu được từ nhiều mẻ khác nhau, vì vậy sản phẩm thu được từ các mẻ chế tạo chúng tôi đều phải thực hiện kiểm tra hiệu suất ghi nhận tín hiệu TL [9, 10]. Kết quả kiểm

tra cho thấy sai số trung bình giữa các mẻ chế tạo cỡ 1,5% (tính theo cường độ TL của đỉnh đo liều). Kết quả này cho phép chúng tôi đánh giá được qui trình chế tạo mẫu bột α-Al_2O_3:Si đang áp dụng là ổn định và có độ lặp lại tốt. Có thể nói rằng chúng tôi đã thành công trong việc chế tạo mẫu với quy trình công nghệ không quá phức tạp, có độ ổn định cao, có thể chế tạo với số lượng lớn, giá thành sản phẩm rẽ, phù hợp với điều kiện thí nghiệm và đáp ứng nhu cầu sử dụng trong nước.

3.2. Đường cong nhiệt phát quang tích phân

Cấu trúc đường cong nhiệt phát quang tích phân của vật liệu phụ thuộc rất mạnh vào loại tạp chất, 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, 3, 4, 5, 6]. Hình 3 là đường cong TL tích phân của mẫu bột α-Al_2O_3:Si, phép đo được thực hiện tại nhiệt độ phòng với tốc độ gia nhiệt $\beta = 5^0C.s^{-1}$, preheat ở 30^0C (mẫu trước đó được chiếu xạ tia X với suất liều D = 1,1Gy). Cấu trúc của đường cong TL tích phân (a) gồm hai dải phát xạ rộng, không chồng chập, có dạng đối xứng Gaussian và có các cực đại ở 202^0C và 334^0C. Mẫu sau đó được làm nguội đến nhiệt độ phòng và thực hiện lặp lại phép đo (mẫu không được chiếu xạ) ở đường cong (b). Kết quả cho thấy tín hiệu TL không xuất hiện trên đường cong tín hiệu nếu mẫu không được chiếu xạ trước đó.



Hình 3. Đường cong TL tích phân của α-Al_2O_3:Si (mẫu chiếu xạ tia X-1,1Gy (a) và mẫu không chiếu xạ (b)). Tốc độ gia nhiệt $\beta = 5^0C.s^{-1}$, preheat ở 30^0C)

Áp dụng phương pháp độ bán rộng của R.Chen [5], kết hợp với việc xem quy luật phát xạ TL là gần đúng theo động học bậc 2 (thể hiện ở dạng đường cong có đối xứng Gaussian) 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 có trên đường cong TL tích phân của vật liệu α-Al_2O_3:Si. Các kết quả được trình bày trong Bảng 1.

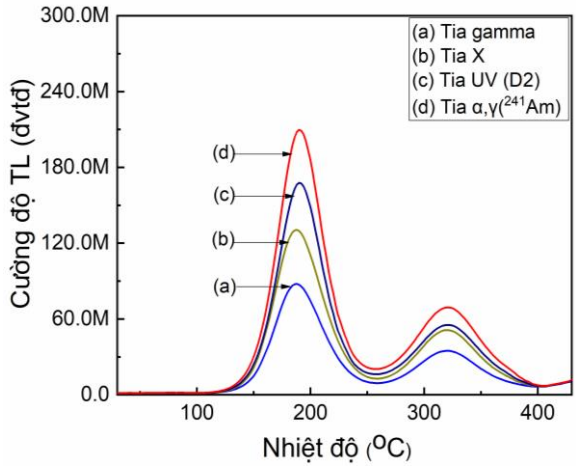
Bảng 1. Bảng giá trị các thông số động học của các bẫy tương ứng với các dải bức xạ trên đường cong TL: năng lượng kích hoạt E_T (eV), hệ số tần số s (Hz) và thời gian sống τ (s)

Cực đại đỉnh T_{max} (^0C)	*Thông số động học của bẫy*		
	***E**(eV)*	***s** (Hz)*	***τ** (giờ, năm)*
202	1,16	$5{,}2.10^{10}$	$1{,}4.10^2$ năm
334	1,44	$3{,}4.10^9$	$3{,}1.10^4$ năm

Từ các số liệu ở Bảng 1, ta có nhận xét rằng với dải có cực đại ở nhiệt độ 202^0C có tần số thoát các điện tử khá bé và thời gian sống ở nhiệt độ phòng khá lớn, chứng tỏ bẫy điện tử tương ứng với dải bức xạ này là bẫy khá bền và ổn định theo thời gian và nhiệt độ. Mặt khác dải bức xạ xuất hiện ở nhiệt độ này rất nhạy với liều chiếu (có cường độ lớn nhất) và cấu trúc dải đơn giản nên dễ phân tích, vì vậy dải này được chọn làm dải đo liều của vật liệu. Dải bức xạ ở 334^0C tương ứng với một bẫy điện tử có thời gian sống lớn, tần số thoát bé ứng với một bẫy sâu (E = 1,44 eV). Tuy nhiên vì dải này nằm trong khoảng nhiệt độ hơi cao, vì vậy trong các phép đo TL tích phân, tín hiệu thường bị trộn lẫn tín hiệu giả (do thanh đốt bị nóng sáng), điều này dẫn đến khó khăn trong việc xác định liều chiếu xạ thật, nên dải này không được chọn để đo liều [9, 10, 11, 12].

3.3. Đáp ứng TL với năng lượng photon của các loại bức xạ ion hóa

Để tìm hiểu khả năng đáp ứng tín hiệu TL của vật liệu α-Al_2O_3:Si với năng lượng các loại tia bức xạ ion hóa khác nhau, chúng tôi sử dụng các mẫu viên nén (có khối lượng mẫu và kích thước mẫu đồng nhất) và tiến hành thực hiện các chế độ xử lý nhiệt, chiếu xạ và đo đạc hoàn toàn như nhau: các mẫu được chiếu xạ bằng các chuẩn liều 1 Gy (bằng cách chuẩn liều theo nguồn chuẩn) bằng các nguồn: tia X (từ nguồn tia X YPC1-X-ray generator), tia γ (từ nguồn ^{60}Co), tia UV (từ nguồn đèn Deuterium SPD-10A - 228-34016-02) và tia α (từ nguồn Americium-241- ^{241}Am). Tín hiệu TL được ghi nhận ở tốc độ gia nhiệt β = 5^{0}C.s^{-1}, preheat ở 30^{o}C, kết quả cho ở Hình 4.



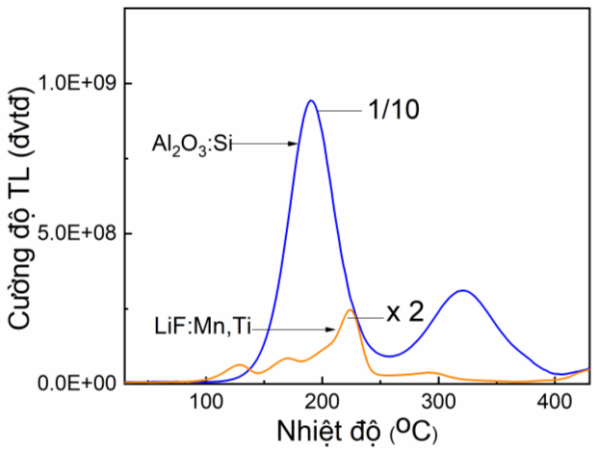
Hình 4. Đáp ứng TL của vật liệu α-Al_2O_3:Si với năng lượng photon của các loại tia bức xạ ion hóa: (a) tia γ, (b) tia X, (c) tia UV và (d) tia α (D = 1Gy, β = 5^{0}C.s^{-1}, preheat ở 30^{0}C).

Kết quả ở Hình 4 cho thấy: vật liệu nhạy nhất với tia α (từ nguồn ^{241}Am), sau đó là tia UV từ nguồn D_2, còn kém nhạy nhất là với tia γ (từ nguồn ^{60}Co). Tuy nhiên trong thực tế nguồn ^{241}Am không chỉ phát tia α mà còn có cả tia γ. Như vậy rõ ràng là vật liệu nhạy với các loại tia có khả năng ion hóa cao (tia α) và năng lượng photon không cần lớn lắm (tia UV), điều này mở ra triển vọng sử dụng vật liệu trong đo liều α và liều UV.

3.4. Đánh giá các khả năng đáp ứng các tiêu chuẩn của liều kế α-Al_2O_3:Si theo hướng đo liều cá nhân và liều UV

3.4.1. Độ nhạy tín hiệu TL

Để đánh giá độ nhạy tín hiệu TL của một vật liệu, thường người ta so sánh tương đối độ nhạy tín hiệu TL của vật liệu đó với độ nhạy tín hiệu của liều kế chuẩn LiF:Mg,Ti (TLD-100) trên cùng một loại bức xạ. Trong thí nghiệm này, 5 mẫu liều kế α-Al_2O_3:Si cùng với 5 liều kế TLD-100 được sử dụng, các phép đo được thực hiện trong cùng điều kiện: chiếu xạ 1Gy (nguồn ^{241}Am), khoảng thời gian giữa chiếu xạ và đọc tín hiệu là 5 phút, tốc độ gia nhiệt 5^{0}C/s, preheat ở 30^{0}C. Hình 5 trình bày kết quả khảo sát độ nhạy TL của 2 loại liều kế α-Al_2O_3:Si và TLD-100.



Hình 5. So sánh đáp ứng TL của 2 liều kế α-Al_2O_3:Si và TLD-100 (chiếu xạ 1Gy - ^{241}Am, tốc độ gia nhiệt 5^{o}C/s, preheat ở 30^{0}C).

Độ nhạy tương đối giữa hai loại vật liệu làm liều kế được xác định bằng biểu thức:

$$S(D) = \frac{F(D)_{Al_2O_3}}{F(D)_{TLD-100}}$$

Trong đó: S(D) là độ nhạy tương đối của liều kế α-Al_2O_3:Si so với liều kế TLD-100 (với D là liều chiếu xạ (Dose)); F(D) là trung bình của tín hiệu TL theo số mẫu đo các loại liều kế. Kết quả cho thấy, độ nhạy tín hiệu TL ứng với bức xạ α (1 Gy- ^{241}Am) của liều kế α-Al_2O_3:Si

cao hơn nhiều so với liều kế chuẩn TLD-100 (S(D) = 20-25 lần). Đối với bức xạ UV thì giá trị đó là S(D) = 35-40 lần. Trong khi đó theo kết quả các công bố của các tác giả trong [7] và [8], với liều kế α-Al_2O_3:C thương phẩm (TLD-900), thì tỷ số độ nhạy đạt khoảng 40-60 lần so với TLD-100 [6, 7, 8, 9].

3.4.2. Độ ổn định tín hiệu theo thời gian lưu giữ mẫu sau khi chiếu xạ

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 và có quy luật rõ rệt [2, 3]. Để đánh giá độ suy hao tín hiệu TL theo thời gian, lô liều kế α-Al_2O_3:Si sau khi chế tạo, được xử lý nhiệt ở 500^0C và chiếu xạ 1Gy (từ nguồn ^{241}Am), sau đó được cho 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 ngày đêm, các mùa). Thời gian khảo sát đáp ứng tín hiệu TL trong khoảng từ thời điểm sau chiếu xạ đến 60 ngày. Các kết quả được tổng hợp trong Bảng 2 cho thấy đáp ứng tín hiệu TL của liều kế sau 24 giờ giảm nhanh (gần 6%), sau đó tín hiệu giảm chậm từ ngày thứ 7 xuống còn 3,38% và khoảng thời gian sau đó đến 60 ngày tín hiệu TL giảm không đáng kể (1,12%). So với tiêu chuẩn để có một liều kế tốt để sử dụng trong đo liều cá nhân phải có độ suy hao của tín hiệu TL theo thời gian cất giữ sau khi chiếu xạ phải nhỏ hơn 7% (tháng đầu tiên) và có quy luật rõ rệt, thì mức độ fading tín hiệu TL của vật liệu α-Al_2O_3:Si (mẫu chế tạo) là chấp nhận được.

Bảng 2. Tổng hợp kết quả khảo sát sự suy giảm tín hiệu TL của vật liệu α-Al_2O_3:Si theo thời gian lưu giữ mẫu tại nhiệt độ phòng.

T (ngày)	5 (phút)	1	2	7	15	30	45	60
R (nC)	158,50	149,10	144,30	139,90	135,30	132,10	130,60	129,8
F (%)	0,00	5,94	4,53	3,38	3,33	2,37	1,13	1,12

T là thời gian lưu giữ,

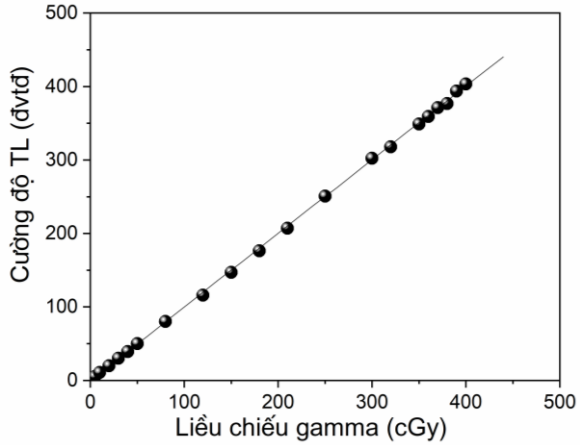
R là đáp ứng liều α sau thời gian lưu giữ.

F = fading (%)

Tất cả dữ liệu tính trung bình từ 10 lần đo trên cùng một mẫu.

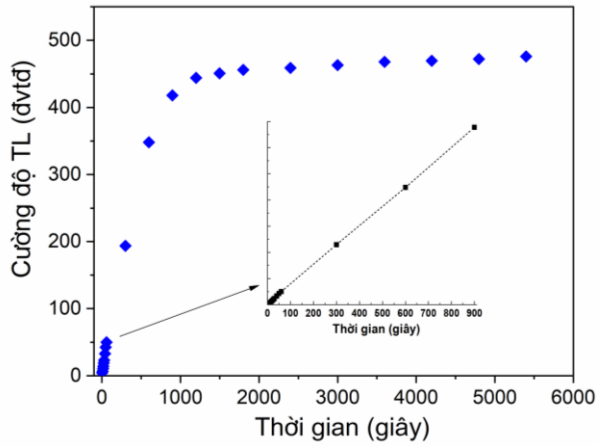
3.4.3. Đáp ứng tín hiệu TL theo liều chiếu xạ

Khả năng đáp ứng tín hiệu TL theo liều chiếu đối với một bức xạ nào đó là một trong những tiêu chí quan trọng khi chế tạo liều kế với mục đích đo liều. Trong đó, khả năng đáp ứng tín hiệu TL theo liều chiếu đối với một bức xạ trong các khoảng liều quan tâm, bao gồm ngưỡng liều đáp ứng, khoảng tuyến tính theo liều chiếu và ngưỡng liều bão hòa là các yếu tố cơ bản.



Hình 6. Đáp ứng tín hiệu TL theo liều chiếu xạ γ trong khoảng từ 1 cGy - 400 cGy
(từ nguồn bức xạ chuẩn ^{60}Co dùng trong xạ trị).

Với mục tiêu sử dụng liều kế trong đo liều cá nhân (có giới hạn liều bão hòa lên đến cỡ 500 cGy) và đo liều UV, chúng tôi đã khảo sát khả năng đáp ứng tín hiệu TL của các liều kế α-Al_2O_3:Si theo hướng ứng dụng này. Hình 6 trình bày kết quả khảo sát trong khoảng liều từ 0,1 cGy - 400 cGy (từ nguồn bức xạ chuẩn ^{60}Co dùng trong xạ trị). Kết quả cho thấy trong dải liều này, đáp ứng tín hiệu TL của vật liệu tuyến tính tốt (hệ số hồi quy tuyến tính đạt 99,988 %). Hơn nữa, kết quả khảo sát ở phần 3.4.1 (so sánh độ nhạy TL với liều kế chuẩn TLD-100) đã cho thấy liều kế α-Al_2O_3:Si chế tạo được có độ nhạy liều UV lớn hơn rất nhiều lần so với TLD-100. Vì vậy, việc khảo sát đáp ứng tín hiệu TL của loại liều kế này theo thời gian chiếu bức xạ UV rất có ý nghĩa. Các liều kế α-Al_2O_3:Si được chiếu UV bằng nguồn đèn D_2 trong những khoảng thời gian chiếu từ 5 giây đến 5400 giây, kết quả cho ở Hình 7.

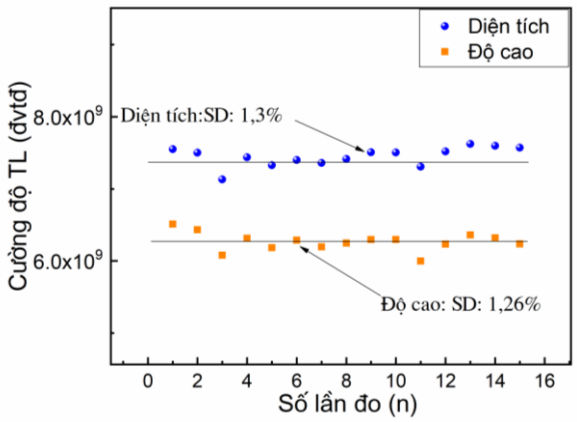


Hình 7. Đáp ứng tín hiệu TL theo thời gian chiếu sáng UV (trong khoảng từ 5 đến 5400 giây chiếu sáng). Đồ thị đưa vào trong hình là đáp ứng trong khoảng từ 5-900 giây chiếu sáng.

Kết quả ở Hình 7 cho thấy, đáp ứng tín hiệu TL vào liều chiếu UV khá tuyến tính trong khoảng thời gian chiếu từ 5 giây đến 900 giây (ngưỡng liều phát hiện tốt khi chiếu 5 giây UV). Khi tăng thời gian chiếu sáng đến 1200 giây, đáp ứng tín hiệu có dạng phi tuyến và tiến tới bão hoà ở khoảng thời gian chiếu > 1200 giây và lâu hơn. Có thể kết luận rằng liều kế chế tạo từ vật liệu Al_2O_3 pha tạp Si rất nhạy với bức xạ UV, đáp ứng khá tuyến tính trong khoảng liều quan tâm (< 400 cGy), hy vọng rằng các sản phẩm có thể sớm được đưa vào ứng dụng trong đo liều cá nhân và đo liều UV [9, 10, 11].

3.4.4. Độ chính xác riêng (Intrinsic Precision)

Độ chính xác riêng là một trong những tiêu chí cần đạt được nếu muốn đưa sản phẩm vào ứng dụng trong thực tế. Tiêu chuẩn chung cho hệ thống đo liều là khi độ lệch chuẩn lớn hơn 2% thì dù lý do từ vật liệu đo liều (liều kế) hay thiết bị đo, hệ thống đó sẽ không được phép sử dụng, đặc biệt là đo liều trong y tế [3, 4, 11, 12, 13]. Hệ đo liều thương mại hiện nay trên thị trường thế giới và trong nước là hệ máy đọc Harshaw TLD-3500, đây là hệ thiết bị ổn định và độ tin cậy cao, vì vậy độ lệch chuẩn (hay độ chính xác riêng) chỉ còn phụ thuộc vào vật liệu đo liều. Để đánh giá yếu tố này, chúng ta lấy ngẫu nhiên 10 mẫu liều kế trong tổng số liều kế từ 1 lô mẫu sản phẩm chế tạo được.



Hình 8. Độ lặp lại đáp ứng tín hiệu TL từ đỉnh đo liều (202 °C) theo hai thông số: tích phân diện tích dưới đường cong và độ cao của đỉnh TL theo số lần đo của liều kế α-Al_2O_3:Si

Các liều kế sau đó sẽ được xử lý, chiếu xạ và đo lặp lại 15 lần trên cùng một qui trình thí nghiệm như nhau (xử lý nhiệt trước chiếu xạ ở 500^{o}C trong 30 phút; chiếu UV trong 3 phút; ghi nhận tín hiệu TL từ 30 - 430^{0}C; tốc độ gia nhiệt 5^{0}C/s). Kết quả khảo sát đối với các liều kế α-Al_2O_3:Si chế tạo được cho ở Hình 8. Các

phân tích cả độ cao đỉnh và diện tích dưới đỉnh dùng trong đo liều đều cho kết quả về độ lệch chuẩn đáp ứng tín hiệu TL của mỗi liều kế sau 15 lần đọc nhỏ hơn 2%.

Như vậy, kết quả khảo sát này cho thấy độ lệch chuẩn đều nằm trong phạm vi giới hạn cho phép của một hệ thống đo liều bằng TL. Có thể đánh giá sơ bộ rằng khả năng đáp ứng tín hiệu TL của liều kế tự chế tạo là ổn định và có độ lặp lại tốt. Mặt khác, vì số lần lặp lại thí nghiệm là 15 lần/mẫu đo đã khẳng định thêm khả năng tái sử dụng nhiều lần của liều kế α-Al_2O_3:Si tự chế tạo, hứa hẹn sẽ đáp ứng tốt các tiêu chí trong đo liều cá nhân và đo liều UV.

4. Kết luận

Liều kế trên cơ sở vật liệu Al_2O_3 pha tạp SiO_2 với nồng độ tạp tối ưu là 0,5 %mol đã được chế tạo thành công bằng phương pháp nung thiêu kết ở nhiệt độ 1100^0C. Vật liệu có độ ổn định nhiệt, cơ, hóa và quang học cao và rất nhạy với các loại bức xạ ion hóa (đặc biệt là bức xạ tử ngoại); đáp ứng TL tuyến tính tốt trong dải liều nhỏ đến μGy (đối với bức xạ UV, đáp ứng TL tuyến tính trong khoảng thời gian chiếu từ 5 ÷ 900 giây); tốc độ suy giảm tín hiệu theo thời gian cất giữ khá thấp (vào khoảng 6% trong 24 giờ đầu, sau đó tín hiệu giảm không đáng kể cở 0,5%); có độ lệch chuẩn trung bình đều nằm trong phạm vi giới hạn cho phép của một hệ thống đo liều TL (<2%). Các thông số mà liều kế chế tạo trên cơ sở vật liệu Al_2O_3 pha tạp SiO_2 đạt được đáp ứng tốt với các tiêu chí để sử dụng trong việc đo liều cá nhân hoặc liều UV. Ngoài ra, quy trình công nghệ chế tạo loại liều kế này không quá phức tạp và có thể chế tạo với số lượng lớn với giá thành sản phẩm rẻ, phù hợp với điều kiện và nhu cầu sử dụng trong nước.

Tài tiệu 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 CaSO4:Tm trong đo liều tích lũy môi trường lòng đất*. Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân. 04(41), 13-20.

[3] T.Ngọc (2021). *Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt phát quang của thủy tinh aluminoborate-kiềm 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] T.Ngọc, N.X.Kha, T.T.Vinh, N.D.Phương, T.T.Linh (2022). *Nghiên cứu chế tạo liều kế tương đương mô $Li_2B_4O_7$:Tm sử dụng trong đo liều xạ trị và đo liều cá nhân.* Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân. 4(53), pp. 31-37.

[5] Chen.R and McKeever.S.W.S (1998). *Theory of thermoluminescence and Related phenomena*, World Scientific.

[6] Flerov.V.I, Skvortsova.V and Flerov.A.V (1996). *"Thermoluminescence of reactor – irradiated aluminium oxde"*. Radiat. Prot. Dosim. Vol. 65, Nos. 1-4, pp. 227-229.

[7] Akselrod M.S, Kortov V.S and Gorelova E.A (1993). *"Preparation and properties of α-Al_2O_3"*. Radiat. Prot. Dosim. Vol. 47, Nos.1-4, pp. 159-164.

[8] Kortov. V and Milman. L (1996). *"Some new data on thermoluminescence propreties of dosimetric α - Al_2O_3 crystals"*. Radiat. Prot. Dosim. Vol.47, Nos.1-4, pp.179-184.

[9] Aguirre J.F, Tailor R.C, Ibbott G.S (2002). *"TLD as tool for remote verifiatian of output radiotherapy beams: 25 years of experience"*. IAEA-CN-82-96.

[10] Akselrod M.S, Kortv V.S, Kravetsky D.J and Gotlib V.I (1990). *"Highly sensitive thermoluminescent anion-defective α-Al_2O_3:C single crystal detectors"*. Radiat. Prot. Dosim. Vol. 32, No. 1, pp. 1- 20.

[11] Azonrín. J, Esparza, Falcony.C, Rivera.T, García.M, Marttínez.E (2002). *"Preparation and thermoluminescence properties of aluminium oxide doped with Europium"*. Radiat. Prot. Dosim. Vol. 100, Nos. 1-4, pp. 277- 279.

[12] Musk.J.H (1993). *"Time-dependent and light-induced fading in victoreen model 2600-80 aluminium oxide thermoluminescence dosimeters"*. Radiat. Prot. Dosim. Vol.47, Nos.1-4, pp.247-249.

[13] Czap. L, Matscheko.G and Andreo. P (1996). *"Intercomparison of ionization chamber calibration factors in the IAEA/WHO Network of SSLS"*. ISSN 1011-2669, No. 35, pp. 17-26.