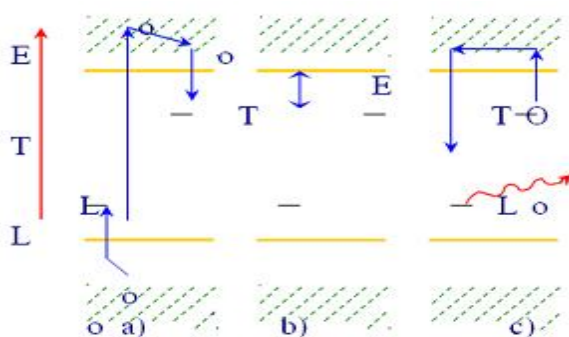


ĐẶC TRƯNG NHIỆT HUỖNH QUANG CỦA LiF: Mg, Cu, P KHI GHI NHẬN BỨC XẠ GAMMA TRÊN HỆ ĐO RGD-3A

Hoàng Đức Tâm*, Thái Khắc Định†

1. Giới thiệu phương pháp

Như đã biết, nhiệt huỳnh quang là hiện tượng vật liệu phát ra các phôtôn trong vùng ánh sáng khả kiến khi được nung nóng dần tới nhiệt độ nhỏ hơn 500°C. Hiện tượng này sẽ không xuất hiện nữa ngay cả khi lặp lại quá trình nung nóng. Bản chất vật lý của hiện tượng là trước khi được nung nóng, dưới tác dụng của các tia phóng xạ, các điện tử chuyển từ vùng hóa trị lên các mức năng lượng trung gian nằm gần vùng dẫn (còn gọi là các bẫy năng lượng phụ). Sau đó, khi vật liệu được tăng dần nhiệt độ các điện tử này sẽ thoát ra khỏi các mức năng lượng trung gian trên để trở về các mức năng lượng cơ bản, kèm với đó sẽ phát ra các lượng tử ánh sáng (Hình 1).



a) *Tương tác của bức xạ hạt nhân với điện tử.*

b) *Chuyển dịch của điện tử tới các mức năng lượng trung gian.*

Khi được đốt nóng điện tử chuyển từ mức năng lượng phụ về mức cơ bản.

Hình 1 - Mô hình động học của quá trình nhiệt huỳnh quang

Cường độ của chùm sáng phụ thuộc vào số lượng các điện tử đã tích lũy trong bẫy năng lượng phụ, hằng số mạng tinh thể và tốc độ gia tăng nhiệt độ... Nó được mô tả bởi công thức sau:

$$I = f(n, S, \beta, E) \tag{1}$$

trong đó, n số điện tử bị giữ trong hố bẫy, S là hệ số dao động của tinh thể, β là tốc độ gia nhiệt, E năng lượng kích hoạt của bẫy bắt điện tử.

* ThS, Khoa Vật lý – Đại học Sư phạm Tp.HCM

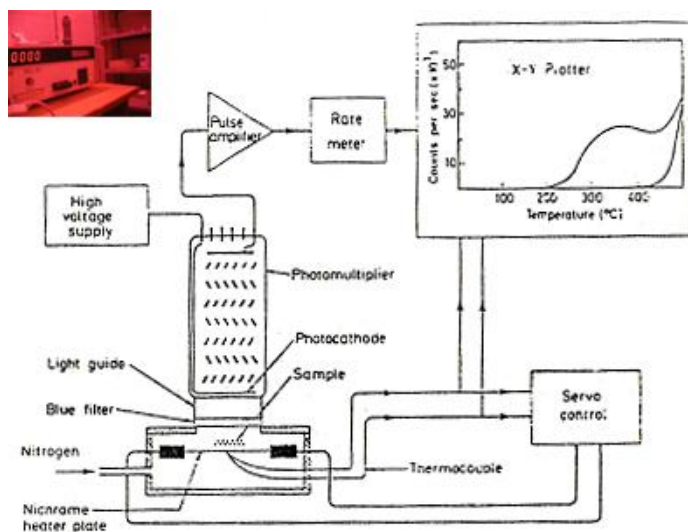
† TS, Khoa Vật lý – Đại học Sư phạm Tp.HCM

Khi quá trình gia tăng nhiệt có dạng tuyến tính liên tục ($T=T_0+\beta.t$) thì biểu thức mô tả đường cong bức xạ nhiệt huỳnh quang có dạng [1,2]:

$$I(T) = \frac{dn}{dt} = S.n_0 \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \exp\left[-\left(\frac{S}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) dT\right] \quad (2)$$

Trong tự nhiên, hiện tượng này đã quan sát được ở một số khoáng vật tự nhiên như: fluorite, thạch anh, hoá thạch, feldspar... Tuy nhiên, để có những vật liệu nhiệt huỳnh quang có chất lượng cao, người ta đã chủ động chế tạo bằng cách sử dụng các chất nền và sau đó sẽ pha thêm các chất tạp (dopant) theo tỷ lệ thích hợp. Flolithium (LiF) là vật liệu như vậy, nó đã được sử dụng khá phổ biến ở nhiều phòng thí nghiệm trên thế giới với mục đích đo liều bức xạ hạt nhân môi trường và y học hạt nhân. Và để tăng khả năng nhiệt huỳnh quang, các chất tạp được sử dụng với nó thường là Mg, Cu và P...[2, 3]

Như vậy, để đo tín hiệu nhiệt phát quang, hệ thiết bị đo ngoài các bộ phận thông thường của một hệ đo bức xạ hạt nhân, như: ống nhân quang điện, bộ phận khuếch đại, xử lý tín hiệu, biểu diễn kết quả đo.... còn có một số bộ phận không thể thiếu là buồng nung và hệ điều khiển chế độ cấp nhiệt. Ảnh và sơ đồ nguyên lý chung của hệ đo nhiệt huỳnh quang hệ đo RGD – 3A được chỉ trên Hình 2 .



Hình 2 - Ảnh và sơ đồ nguyên lý chung của hệ đo nhiệt huỳnh quang

Hình 2 cho thấy, mẫu đo được đặt trên khay đo bằng kim loại mà hai đầu của nó được gắn với hai cực của một nguồn điện làm nóng khay. Tín hiệu ánh sáng phát ra từ mẫu sẽ được đưa tới photocathode của một ống nhân quang điện. Xung điện ở lõi ra của ống nhân quang điện sau khi qua bộ khuếch đại xung sẽ được bộ phận xử lý xung và được gửi tới bộ chỉ thị.

Nhiệt độ của khay đốt sẽ được đo bằng cặp nhiệt điện gắn dưới khay đo và cũng được hiển thị tại màn hình. Thông tin điều khiển nhiệt độ từ bàn phím sẽ được đưa tới các server điều khiển để tắt mở dòng điện qua khay đốt.

2. Tiến hành thực nghiệm

Thực nghiệm nghiên cứu đặc tính nhiệt huỳnh quang của *LiF: Mg, Cu, P* được tiến hành với những mẫu phẩm do Viện Nghiên cứu hạt nhân Bắc Kinh cung cấp. Mẫu có dạng bột với độ hạt 1-10 μm , đây là loại mẫu có khả năng hút ẩm cao lên trong quá trình thí nghiệm mẫu phẩm cần luôn được đặt trong chế độ hút ẩm bởi silicagen.

Về nguyên tắc, có thể xác định được giá trị liều chiếu xạ bằng việc đo số xung phát ra từ mẫu phẩm và độ nhạy nhiệt huỳnh quang của nó. Song sự phức tạp của các quá trình vật lý diễn ra trong vật liệu, sự mất tín hiệu nhiệt huỳnh quang trong quá trình bảo quản và đặc biệt là khả năng suy giảm độ nhạy nhiệt huỳnh quang qua quá trình sử dụng... Tất cả sẽ làm cho kết quả đo sẽ kém chính xác hơn. Để khắc phục các vấn đề trên, chúng tôi đã lựa chọn giải pháp chuẩn trong cho các thí nghiệm của mình.

Nguồn bức xạ hạt nhân được lựa chọn làm nguồn chuẩn là nguồn phóng xạ ^{137}Cs đặt tại Viện Khoa học và Kỹ thuật hạt nhân (Hà Nội). Đây là nguồn phóng xạ gamma có khả năng phát các chùm tia với dải năng lượng là 0,661 MeV. Nguồn có chu kỳ bán rã tương đối lớn (30 năm) nghĩa là nguồn hoàn toàn có khả năng cung cấp chùm tia phóng xạ có cường độ ổn định trong thời gian làm thí nghiệm. Ở đây, có một vấn đề kỹ thuật cần phải giải quyết, đó là giá trị liều lượng các mức chiếu xạ bao nhiêu là phù hợp. Rõ ràng là không thể chọn những mức liều quá lớn, điều này không những gây tốn thời gian, tiền bạc, nguy hiểm cho người thao tác mà còn có thể dẫn đến sự tràn thang đo, thậm chí không thể đo đạc được. Ngược lại, nếu chọn những mức liều quá bé sẽ không có đủ các

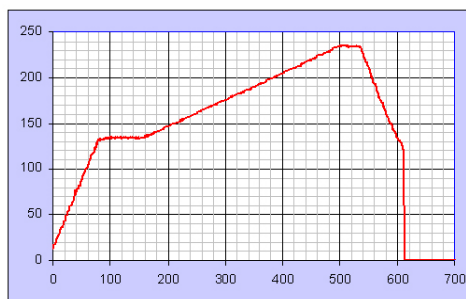
hiệu ứng cần thiết để đo đặc, lượng xung đo được quá ít thậm chí sẽ làm các kết quả nghiên cứu thiếu tin cậy và thiếu sức thuyết phục.

Ngoài ra, mặc dù về lý thuyết chỉ cần hai điểm cũng có thể xây dựng được đường tuyến tính, song để đạt độ chính xác cao, cần phải sử dụng thêm các mức chiếu bổ sung. Do vậy, căn cứ vào những nghiên cứu trước đây [3, 4] và công bố của một số tác giả khác [1, 2], chúng tôi đã đề xuất 4 mức chiếu xạ áp dụng cho thực nghiệm nghiên cứu độ nhạy nhiệt huỳnh quang của vật liệu *LiF: Mg, Cu, P* với các giá trị liều là: 5mGy; 10mGy; 15mGy và 25mGy.

Từ đó, theo số liệu đã biết về chỉ số hoạt độ phóng xạ của nguồn, sẽ xác định được lượng thời gian chiếu cần thiết để cho phép nhận được các mức liều chiếu với giá trị trên.

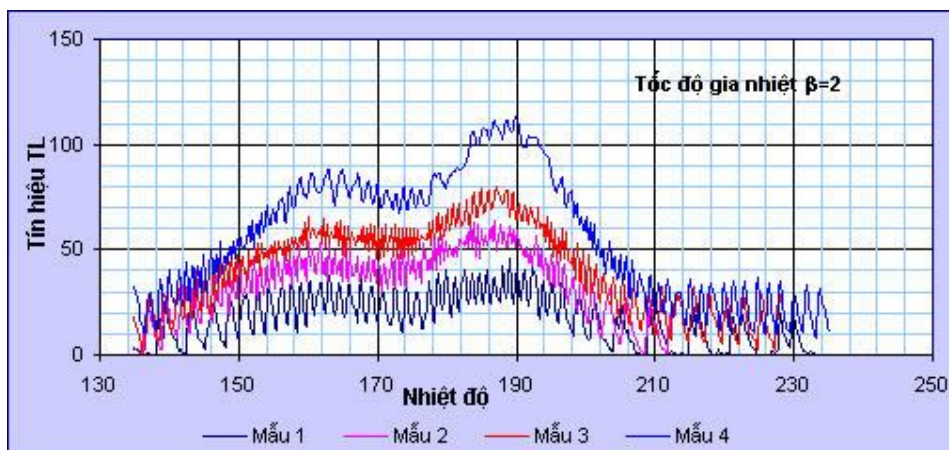
Các mẫu sau khi chiếu xạ, được bảo quản trong buồng phong thấp qua khoảng thời gian 72 giờ, nhằm loại bỏ các nhiễu phóng xạ có thời gian sống ngắn gây bởi quá trình chiếu xạ mẫu. Sau đó, lượng bức xạ nhiệt huỳnh quang trong đó sẽ được đo trên hệ đo RGD – 3A, với các chế độ nhiệt như sau:

- Nhiệt độ nung đầu: 135°C
- Thời gian nung đầu: 6 giây
- Nhiệt độ nung cuối: 240°C
- Thời gian nung cuối: 6 giây
- Tốc độ gia nhiệt: 6 °C/giây

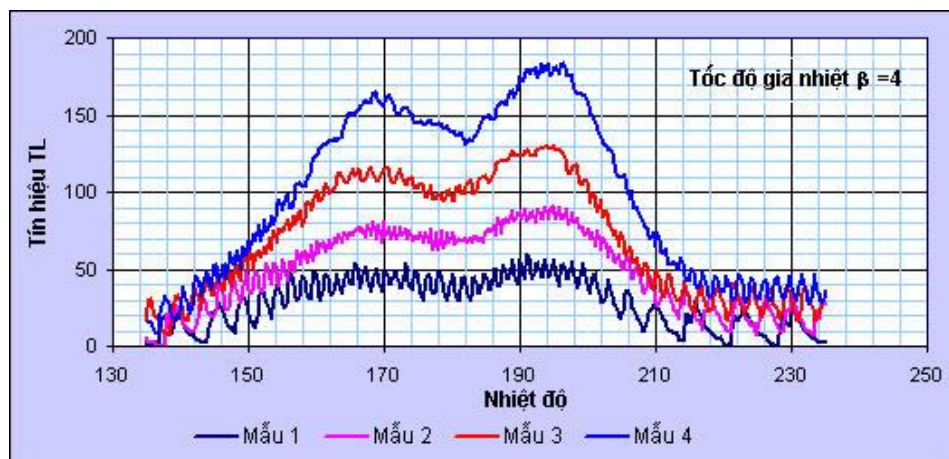


Hình 3 - Đồ thị tăng nhiệt ở hệ đo RGD - 3A

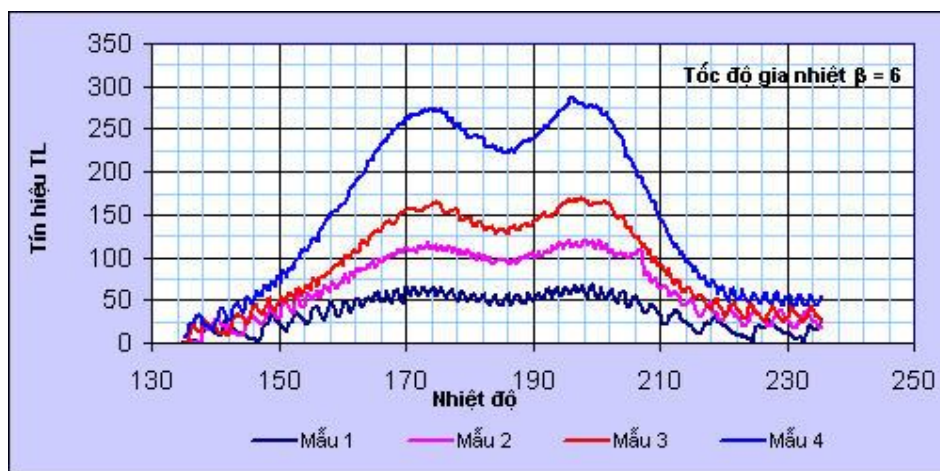
Các chế độ đo trên được giữ nguyên với tất cả mẫu, chỉ có tốc độ gia tăng nhiệt độ sẽ được thay đổi với các giá trị là 2; 4; 6 và 8°C/giây. Kết quả sẽ cho thấy có sự khác nhau về hình dạng phổ phát xạ như được chỉ trong các Hình 4a, 4b, 4c và 4d.



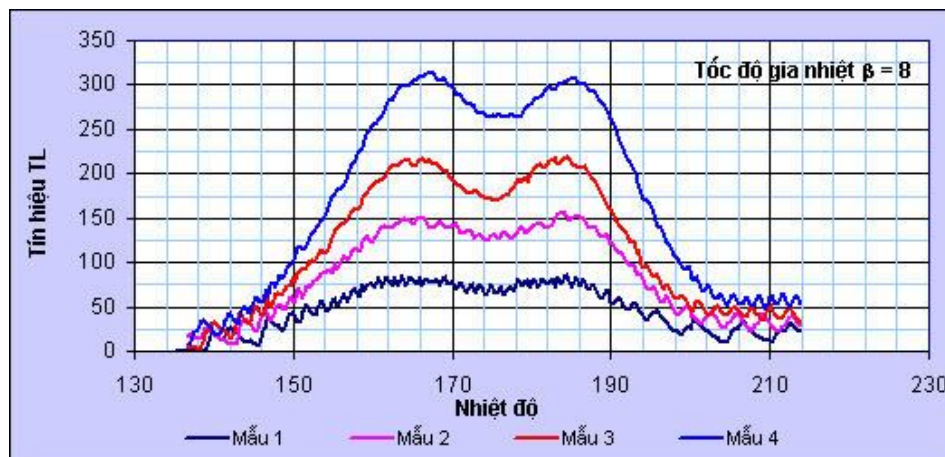
Hình 4a. Phổ nhiệt huỳnh quang với tốc độ gia nhiệt 2°C/s



Hình 4b. Phổ nhiệt huỳnh quang với tốc độ gia nhiệt 4°C/s



Hình 4c. Phổ nhiệt huỳnh quang với tốc độ gia nhiệt 6°C/s



Hình 4d. Phổ nhiệt huỳnh quang với tốc độ gia nhiệt 8°C/s

Hình 4 – Phổ nhiệt huỳnh quang của vật liệu LiF: Mg, Cu, P với 4 tốc độ gia nhiệt

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Độ nhạy nhiệt huỳnh quang của vật liệu LiF: Mg, Cu, P với các tốc độ gia nhiệt khác nhau.

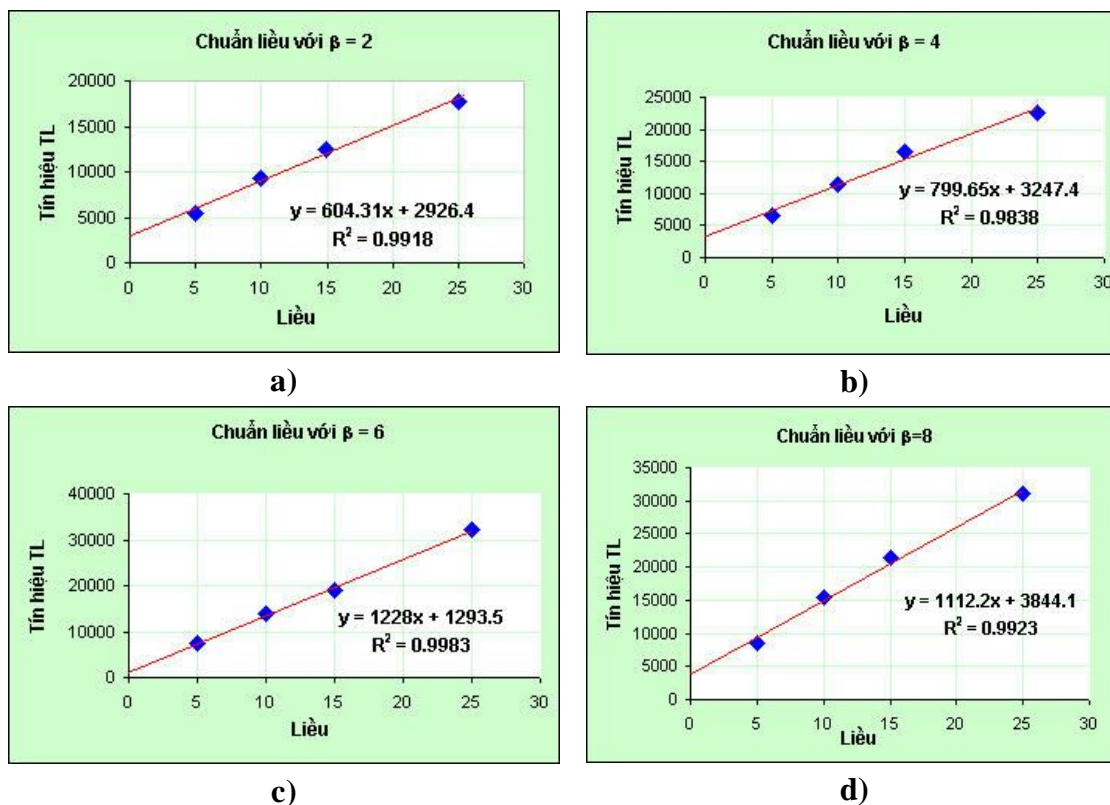
Từ các kết quả đo được như đã biểu diễn trên các đường phổ trong các Hình 4a, 4b, 4c và 4d với cửa sổ lấy tín hiệu ở khoảng từ 135°C đến 210°C , chúng tôi thu được các số xung (tín hiệu TL) tương ứng trong từng phép đo như chỉ trong Bảng 1 sau:

Bảng 1. Số xung đo được trong các phép đo với cửa sổ 135°C đến 210°C

Tốc độ tăng nhiệt ($^{\circ}\text{C/s}$)	Liều chiếu (mGy)			
	5	10	15	25
2	5468	9291	12469	17715
4	6596	11296	16463	22615
6	7509	13892	19084	32228
8	8559	15519	21389	31079

Như đã trình bày trong những công trình trước đây, độ nhạy nhiệt huỳnh quang của vật liệu phản ánh số tín hiệu nhiệt huỳnh quang phát ra trong một đơn vị liều chiếu, được xác định theo hệ số góc của đường chuẩn tuyến tính. Từ

những kết quả thu được trong Bảng 1, chúng tôi đã xây dựng được các đồ thị tuyến tính xác định hệ số độ nhạy nhiệt huỳnh quang như chỉ trong các hình 4a, 4b, 4c và 4d.



Hình 5 – Đồ thị xác định độ nhạy nhiệt huỳnh quang mẫu với các tốc độ tăng nhiệt khác nhau

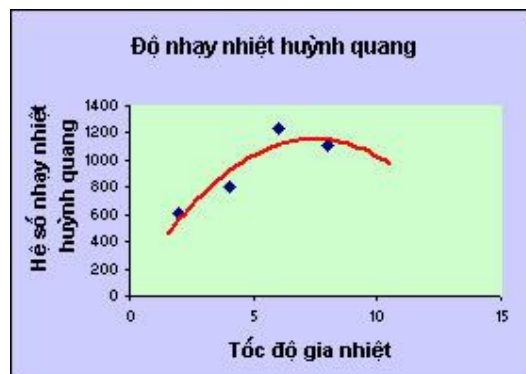
a) Phép đo với tốc độ tăng nhiệt là 2°C/s ; b) Phép đo với tốc độ tăng nhiệt là 4°C/s
 c) Phép đo với tốc độ tăng nhiệt là 6°C/s ; d) Phép đo với tốc độ tăng nhiệt là 8°C/s

Kết quả trên Hình 5 cho thấy đã có sự tuyến tính tốt giữa lượng số xung thu được trong kênh đo với sự gia tăng lượng liều bức xạ gamma chiếu với lên mẫu, hệ số tương quan R đều đạt quá 0,9.

3.2. Tốc độ gia nhiệt tối ưu đối với vật liệu *LiF: Mg, Cu, P*

Từ những kết quả nhận được trong Hình 5, chúng tôi thấy rằng, độ nhạy nhiệt huỳnh quang thay đổi theo tốc độ gia nhiệt và có một cực đại ở khoảng tốc độ 5°C/s - 6°C/s , như chỉ trên Hình 6.

Kết quả trên hình 6 cho thấy, mỗi đỉnh bức xạ nhiệt huỳnh quang đều có liên quan đến một mức năng lượng của hố bẫy điện tử nào đó. Khi mẫu vật được nung nóng các điện tử này sẽ thoát ra để trở về trạng thái năng lượng cơ bản và kèm với đó là n quá trình bức xạ ra những lượng tử ánh sáng khả kiến. Quá trình giải phóng các điện tử ở hố bẫy không những liên quan đến mức năng lượng liên kết mà còn chịu ảnh hưởng bởi đến tốc độ gia nhiệt độ.



Hình 6 – Đồ thị thay đổi độ nhạy nhiệt huỳnh quang theo tốc độ tăng nhiệt

Nghĩa là, mỗi hố giữa điện tử sẽ có một giá trị tăng nhiệt tối ưu để có thể ghi được lượng ánh sáng bức xạ ra là cực đại, lượng điện tử thoát ra nhiều nhất. Kết quả trên Hình 5 cũng cho thấy với liều kế *LiF: Mg, Cu, P* tốc độ tăng nhiệt tối ưu là 6°C/s-7°C/s.

3.3. Thử nghiệm đánh giá các tham số động học của vật liệu *LiF: Mg, Cu, P* theo mô hình động học bậc 1

Thử nghiệm xác định các tham số động học của quá trình nhiệt huỳnh quang diễn ra trong vật liệu *LiF: Mg, Cu, P* cũng đã được tiến hành. Như đã nêu trong [2, 3] có một số phương pháp để xác định các tham số này. Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng cách đánh giá theo mức dịch chuyển của đỉnh bức xạ với các tốc độ tăng nhiệt khác nhau. Chẳng hạn với hai tốc độ tăng nhiệt β_1 và β_2 tương ứng có vị trí các đỉnh bức xạ là T_{max1} và T_{max2} ; Từ phương trình (2) có phương trình xác định giá trị năng lượng kích hoạt của bẫy E (eV) như sau:

$$E = \left[\frac{k \cdot T_{max1} \cdot T_{max2}}{(T_{max1} - T_{max2})} \ln \frac{\beta_1 \cdot T_{max1}}{\beta_2 \cdot T_{max2}} \right] \quad (3)$$

trong đó, T_{max1} và T_{max2} là giá trị nhiệt độ của đỉnh ở các tốc độ gia nhiệt $\beta_1; \beta_2$, $k = 8,517 \cdot 10^{-5} \text{ eV/K}$ là hằng số Boltzmann.

Hệ số tần số thoát S (s⁻¹) được tính theo công thức:

$$S = \frac{\beta_1}{(T_{\max 1} - T_{\max 2})} \exp\left(\frac{E}{k \cdot T_{\max 1}}\right) \left[\left(T_{\max 2} \cdot \ln \frac{T_{\max 2}^2}{\beta_2} \right) - \left(T_{\max 1} \cdot \ln \frac{T_{\max 1}^2}{\beta_1} \right) \right] \quad (4)$$

Hơn nữa, để tăng thêm độ chính xác của kết quả tính, Hoogenstraaten (1958) đã đưa ra giải kết hợp nhiều tốc độ tăng nhiệt khác, khi đó nếu xây dựng đồ thị với trục đứng là các giá trị của $\ln(T_{\max i}^2/\beta_i)$ còn trục ngang là các giá trị của $1/T_{\max i}$ sẽ thấy rằng sự phụ thuộc của $\ln(T_{\max i}^2/\beta_i)$ theo $1/T_{\max i}$ sẽ là một đường thẳng. Kết quả của biểu diễn còn cho thấy, hệ số nghiêng của đường thẳng giá trị năng lượng của hố bẫy, còn S sẽ được tính theo giao điểm của đường thẳng đó với trục tung khi ngoại suy giá trị $1/T=0$.

Với những phổ nhiệt huỳnh quang thu được trong Hình 4, trong miền nhiệt độ từ 135^oC đến 210^oC quan sát thấy hai đỉnh và mối liên hệ giữa tốc độ tăng nhiệt và vị trí các đỉnh như sau (Bảng 2).

Bảng 2. Dịch chuyển của đỉnh phổ nhiệt huỳnh quang theo tốc độ tăng nhiệt

β_i (°C/s)	$T_{\max 1}$ (°C)	$T_{\max 2}$ (°C)
2	158	188
4	168	194
6	174	198
8	168	188

Từ đó, tính được các giá trị $\ln(T_{\max i}^2/\beta_i)$ và $1000/T_{\max i}$ như trong Bảng 3.

Bảng 3. Mối liên hệ xác định E và S theo phương pháp thay đổi tốc độ tăng nhiệt

Đỉnh thứ nhất		Đỉnh thứ hai	
$\ln(T_{\max 1}^2/\beta_1)$	$1000/T_{\max 1}$	$\ln(T_{\max 2}^2/\beta_2)$	$1000/T_{\max 2}$
9.43	6.33	9.78	5.32
8.86	5.96	9.15	5.15
8.53	5.75	8.78	5.05
8.17	5.95	8.39	5.32

Thực hiện phép xây dựng đường hồi quy tuyến tính với các số liệu ở miền tăng của độ nhạy nhiệt huỳnh quang nhận được các giá trị E và S cho hai đỉnh

trên như sau: ($E_1= 1,56\text{eV}$; $S_1=0,46.10^{20}\text{s}^{-1}$) và ($E_2=3,72\text{eV}$; $S_2=1,08.10^{45}\text{s}^{-1}$). Và, nếu xây dựng đường hồi quy tuyến tính với các số liệu ở miền giảm của độ nhạy nhiệt huỳnh quang thì các giá trị E và S nhận được sẽ là: ($E_1= 0,80\text{eV}$; $S_1= 0,77.10^{11}.\text{s}^{-1}$) và ($E_2= 0,82\text{eV}$; $S_2= 1,32.10^{11}.\text{s}^{-1}$)

So sánh với những kết quả thu được với những kết quả tính toán theo phần mềm mô phỏng GLOWSIM [3] thấy rằng kết quả tính đỉnh thứ nhất ở miền độ nhạy nhiệt huỳnh quang giảm gần giống hơn. Nguyên nhân của hiện tượng này là phương pháp xác định các tham số động học nhiệt huỳnh quang theo các tốc độ tăng nhiệt khác nhau chỉ thích hợp với loại vật liệu động học bậc 1 còn với loại vật liệu có quá trình động học phức tạp thì kết quả sẽ sai khác đáng kể.

4. Kết luận

Những đặc trưng về độ nhạy nhiệt huỳnh quang của vật liệu **LiF: Cu, Mg, P** ở khoảng nhiệt độ từ 135°C đến 210°C với các tốc độ gia nhiệt khác nhau đã được chúng tôi xem xét. Kết quả cho thấy trong khoảng nhiệt độ từ 135°C đến 210°C đường bức xạ nhiệt huỳnh quang có hai đỉnh phân biệt: một ở khoảng 160°C - 170°C và một ở khoảng 188°C - 198°C (Hình 4). Cường độ bức xạ nhiệt huỳnh quang phát ra từ hai đỉnh này có sự tốt tuyến tính với gia tăng liều bức xạ gamma chiếu lên mẫu (Hình 5). Kết quả đánh giá thay đổi độ nhạy nhiệt huỳnh quang của vật liệu với cửa số đo từ 135°C đến 210°C (bao gồm chung cả hai đỉnh nhiệt huỳnh quang) đã cho thấy khi có tốc độ tăng nhiệt là 6°C/s thì độ nhạy nhiệt huỳnh quang của vật liệu sẽ đạt giá trị cao nhất (Hình 6).

Thử nghiệm đánh giá các tham số động học nhiệt huỳnh quang của **LiF: Mg, Cu, P** theo phương pháp Hoogenstraaten cũng được tiến hành, kết quả thu được có sự khác biệt đáng kể với những số liệu tính theo chương trình mô phỏng (GLOWSIM) chứng tỏ quá trình động học trong loại vật liệu này có nhiều bậc khác nhau.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Aitken M.J (1985), *Thermoluminescence Dating*, Oxford University Press.
- [2]. cKeever S.W (2000), *Thermoluminescence of Solid*, Cambridge University Press.
- [3]. Nguyen Quang Mien, Bui Van Loat, Le Hong Khiem (2003), *Kinectic Characteristics of the Thermoluminescence of LiF: Mg, Cu, P*, Báo cáo hội nghị vật lý chất rắn toàn quốc lần thứ IV, Núi cóc 5-7/11.
- [4]. Antoine Zink (1996), *Thermoluminescence des feldspaths: Emission par effect tunnel et par thermoluminescence dans l'infrarouge incidences sur ladatation des feldspáth*. Thèse Doctoral de l'universite' de Bordeaux III.
- [5]. Vĩnh Hào, Lê Hồng Khiêm (2003), *Mô phỏng đường cong nhiệt huỳnh quang*, Báo cáo hội nghị vật lý chất rắn toàn quốc lần thứ IV, Núi cóc 5-7/11.

Tóm tắt

Đặc trưng nhiệt huỳnh quang của LiF: Mg, Cu, P khi ghi nhận bức xạ gamma trên hệ đo RGD-3A

LiF: Mg, Cu, P là loại vật liệu nhiệt huỳnh quang với bức xạ gamma và bê-ta nó có tác dụng tương đương mô sinh học. Do vậy, nó có nhiều khả năng áp dụng để đo liều bức xạ hạt nhân môi trường và y tế. Tuy nhiên, vật liệu này thường có nhiều đỉnh phát xạ và thường thay đổi tùy vào chế độ gia công và kiểu thức đo. Qua những thực nghiệm nghiên cứu về thay đổi của lượng bức xạ nhiệt phát quang và sự dịch chuyển của các đỉnh phát quang theo các tốc độ gia nhiệt khác, bài báo đã nêu lên sự thay đổi độ nhạy nhiệt huỳnh từ đó đề xuất chế độ gia nhiệt tối ưu khi đo liều bằng vật liệu *LiF: Mg, Cu, P* trên hệ đo RGD-3A

Abstract

The thermo-luminescence characteristics of lif: Mg, Cu, P in measuring gamma ray by the RGD-3A

LiF: Mg, Cu, P is a type of thermo-luminescence material whose beta and gamma radiations have an effect equivalent to biological tissues. Therefore, it's very likely to be applied for radiation dose measurement in the fields of environment and health. However, this material usually has many radiation peaks

and changes depending on processing and measuring modes. According to many pieces of experimental research about changes in the amount of thermo-luminescence radiation and the movement of thermo-luminescence peaks due to various heating rates, this article shows the changes in thermo-luminescence sensitivity and then proposes the optimal heating rate mode when measuring dose by *LiF: Mg, Cu, P* on RGD-3A.